

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUGIMURA, Akihide
Kazan Building
2-4, Kasumigaseki 3-chome
Chiyoda-ku
Tokyo 100-0013
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 05 May 2000 (05.05.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference	
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input type="checkbox"/> the applicant	<input type="checkbox"/> the inventor	<input checked="" type="checkbox"/> the agent
<input type="checkbox"/> the common representative		
Name and Address	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the person	<input type="checkbox"/> the name	<input type="checkbox"/> the address
<input type="checkbox"/> the nationality	<input type="checkbox"/> the residence	
Name and Address 1) SUGIMURA, Akihide 2) SUGIMURA, Kosaku Kazan Building 2-4, Kasumigaseki 3-chome Chiyoda-ku Tokyo 100-0013 Japan	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary: The persons in Box 2 have been appointed as agents.		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer</p> <p>Masashi HONDA</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
--	--



PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUGIMURA, Akihide
Kazan Building
2-4, Kasumigaseki 3-chome
Chiyoda-ku
Tokyo 100-0013
JAPON

Date of mailing (day/month/year)
05 May 2000 (05.05.00)

Applicant's or agent's file reference

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.
PCT/JP99/01429

International filing date (day/month/year)
23 March 1999 (23.03.99)

1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☐ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address

State of Nationality

State of Residence

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☒ the person ☐ the name ☐ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address

TOKYO UNIVERSITY OF AGRICULTURE &
TECHNOLOGY
3-8-1, Harumi-cho
Fuchu-shi
Tokyo 183-8538
Japan

State of Nationality

JP

State of Residence

JP

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

3. Further observations, if necessary:

The applicant identified in Box 2 should be included on the record as an additional applicant for all designated States except US.

4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office ☐ the designated Offices concerned
☐ the International Searching Authority ☒ the elected Offices concerned
☐ the International Preliminary Examining Authority ☐ other:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Masashi HONDA

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

**NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE**

(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUGIMURA, Akihide
Kazan Building
2-4, Kasumigaseki 3-chome
Chiyoda-ku
Tokyo 100-0013
JAPON

Date of mailing (day/month/year)

05 May 2000 (05.05.00)

Applicant's or agent's file reference

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.

PCT/JP99/01429

International filing date (day/month/year)

23 March 1999 (23.03.99)

1. The following indications appeared on record concerning:



the applicant



the inventor



the agent



the common representative

Name and Address

UENO, Tomo
Room No. 3509
2-11, Tsukuda 2-chome
Chuo-ku
Tokyo 104-0051
Japan
(Applicant and Inventor for all designated States)

State of Nationality

JP

State of Residence

JP

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:



the person



the name



the address



the nationality



the residence

Name and Address

UENO, Tomo
Room No. 3509
2-11, Tsukuda 2-chome
Chuo-ku
Tokyo 104-0051
Japan
(Applicant for US Only and Inventor for all
designated States)

State of Nationality

JP

State of Residence

JP

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:



the receiving Office



the designated Offices concerned



the International Searching Authority



the elected Offices concerned



the International Preliminary Examining Authority



other:

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Masashi HONDA

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year)
01 November 1999 (01.11.99)

International application No.
PCT/JP99/01429

Applicant's or agent's file reference

International filing date (day/month/year)
23 March 1999 (23.03.99)

Priority date (day/month/year)
27 March 1998 (27.03.98)

Applicant
UENO, Tomo

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
19 October 1999 (19.10.99)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Maria Kirchner

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP99/01429

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁶ H01L21/316, H01L21/318

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl.⁶ H01L21/316, H01L21/318

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1957-1993 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1972-1993 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 7-29898, A (Tadahiro Ohmi), 31 January, 1995 (31. 01. 95), Full text & WO, 9502896, A1 & EP, 709879, A1 & EP, 709879, A4	1, 2, 4, 5, 6, 7, 8, 9
A	JP, 9-64176, A (Oki Electric Industry Co., Ltd.), 7 March, 1997 (07. 03. 97), Column 2, lines 20 to 28 Column 3, lines 2 to 17 & EP, 788148, A1 & EP, 788148, A4	1
A	JP, 10-242142, A (ASM Japan K.K.), 11 September, 1998 (11. 09. 98), Column 4, lines 25 to 27 (Family: none)	1
A	JP, 63-206461, A (Nippon Telegraph & Telephone Corp.), 25 August, 1988 (25. 08. 88), Full text (Family: none)	3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
15 June, 1999 (15. 06. 99)

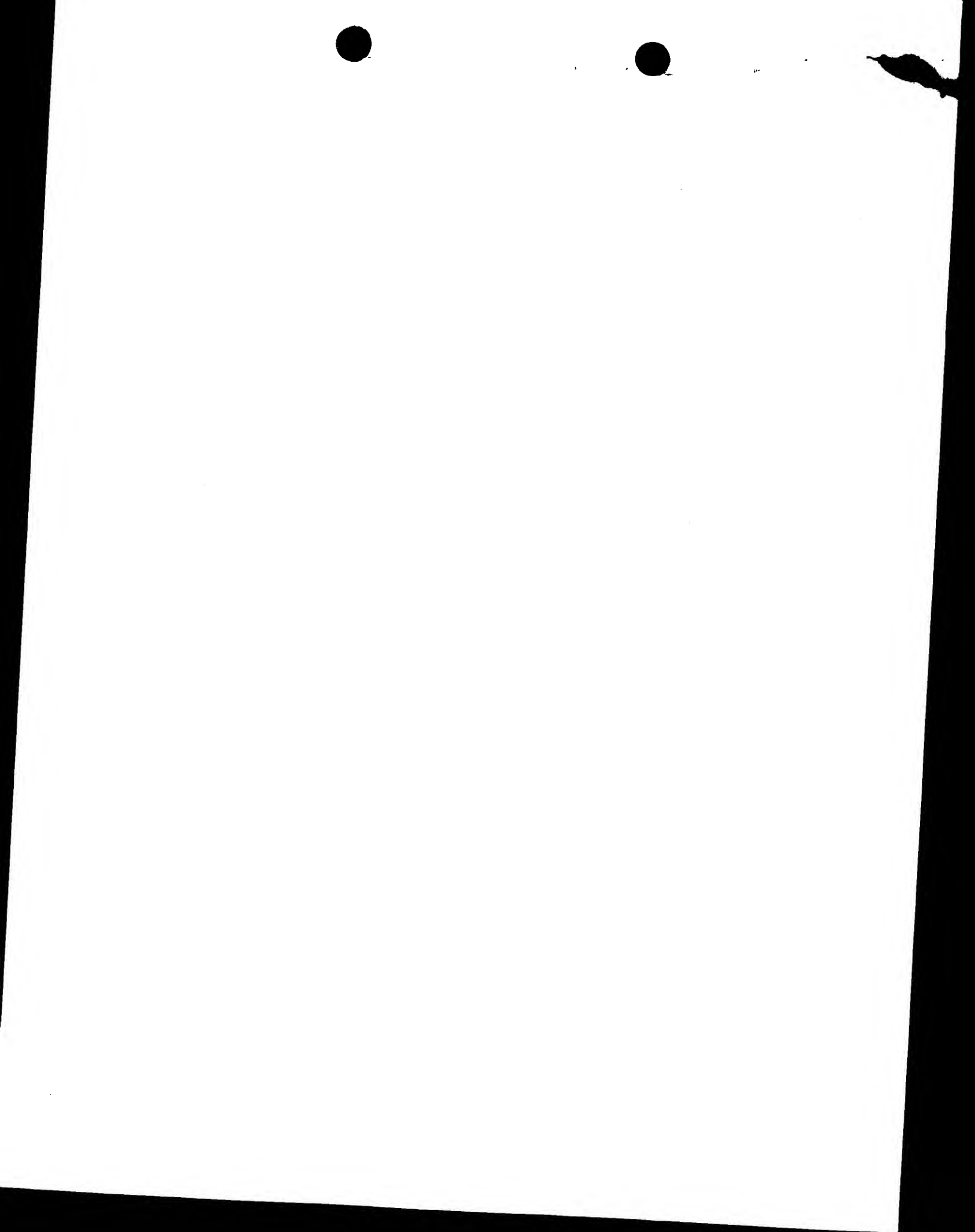
Date of mailing of the international search report
22 June, 1999 (22. 06. 99)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int CL⁶ H01L21/316, H01L21/318

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int CL⁶ H01L21/316, H01L21/318

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1957-1993
 日本国公開実用新案公報 1972-1993
 日本国登録実用新案公報 1994-1999
 日本国実用新案登録公報 1996-1999

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 7-29898, A (大見忠弘), 31. 1月. 1995 (31. 01. 95), 全文, &WO, 9502896, A1 &EP, 709879, A1 &EP, 709879, A4	1, 2, 4, 5, 6, 7, 8, 9
A	J P, 9-64176, A (沖電気工業株式会社), 7. 3月. 1997 (07. 03. 97), 第2欄, 第20-28行, 第3欄, 第2-17行, &EP, 788148, A1 &EP, 788148, A4	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15. 06. 99

国際調査報告の発送日

22.06.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号 100-8915

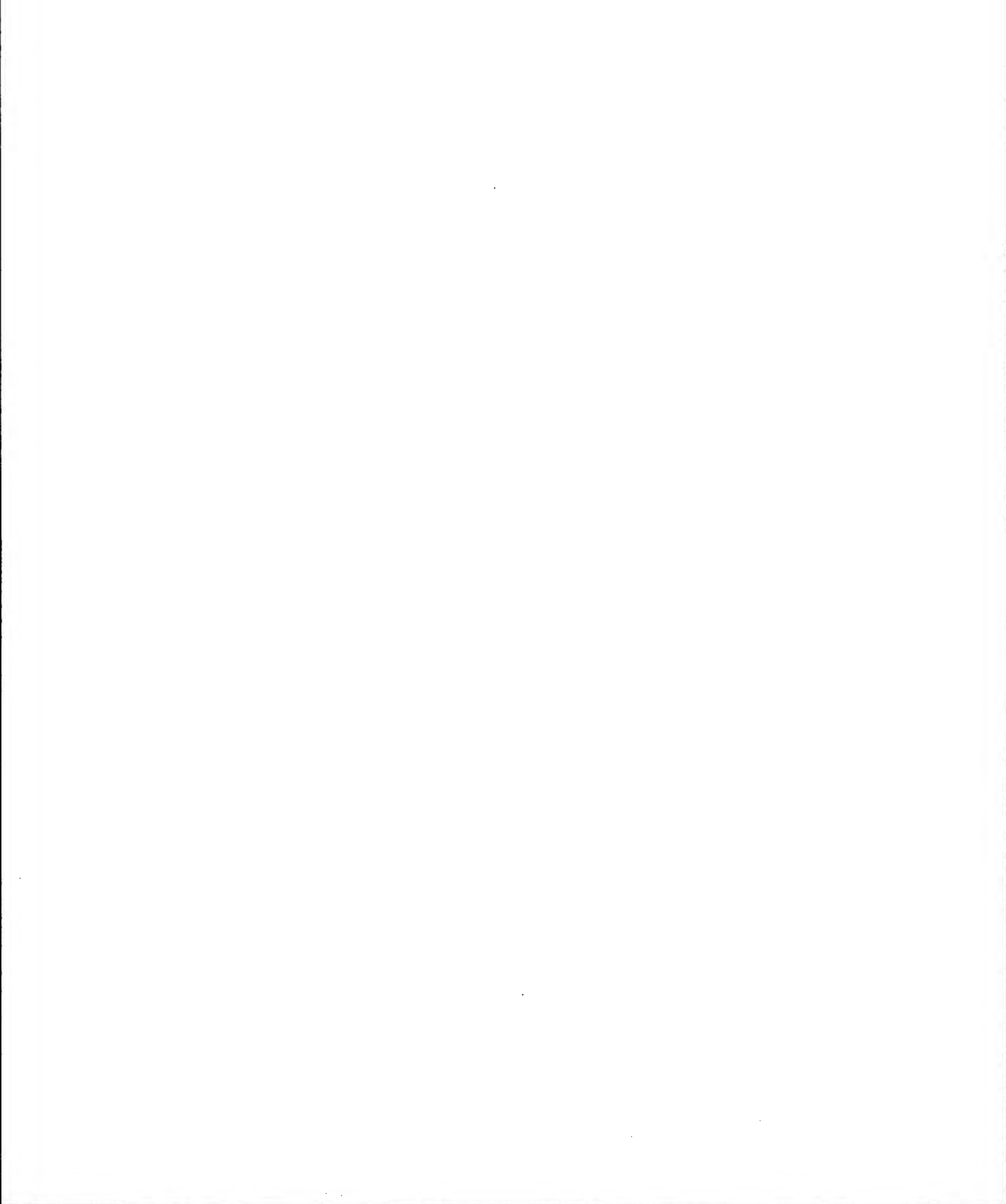
特許庁審査官 (権限のある職員)

池淵 立

4 R

8831





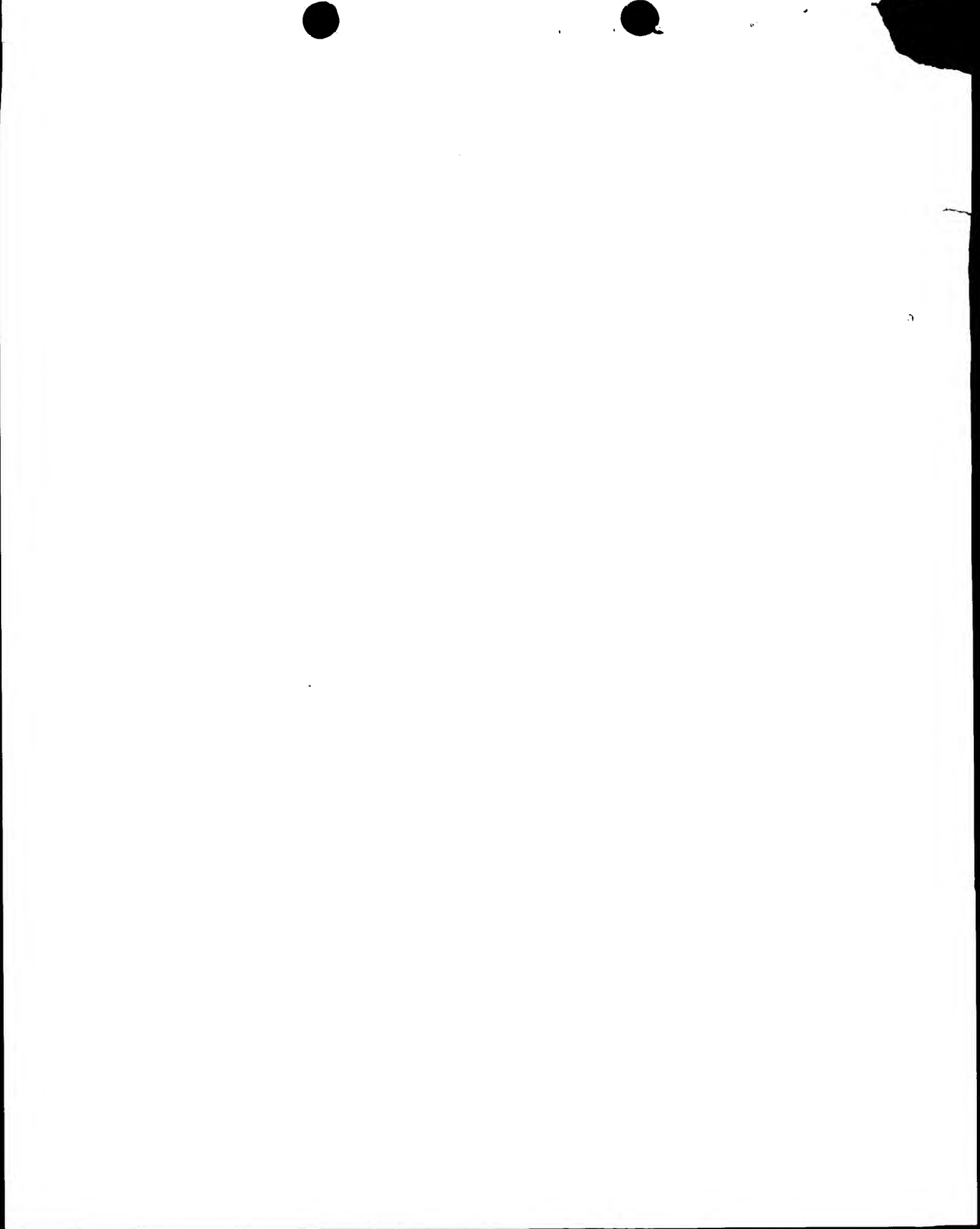
INTERNATIONAL SEARCH REPORT

national application No.

PCT/JP99/01429

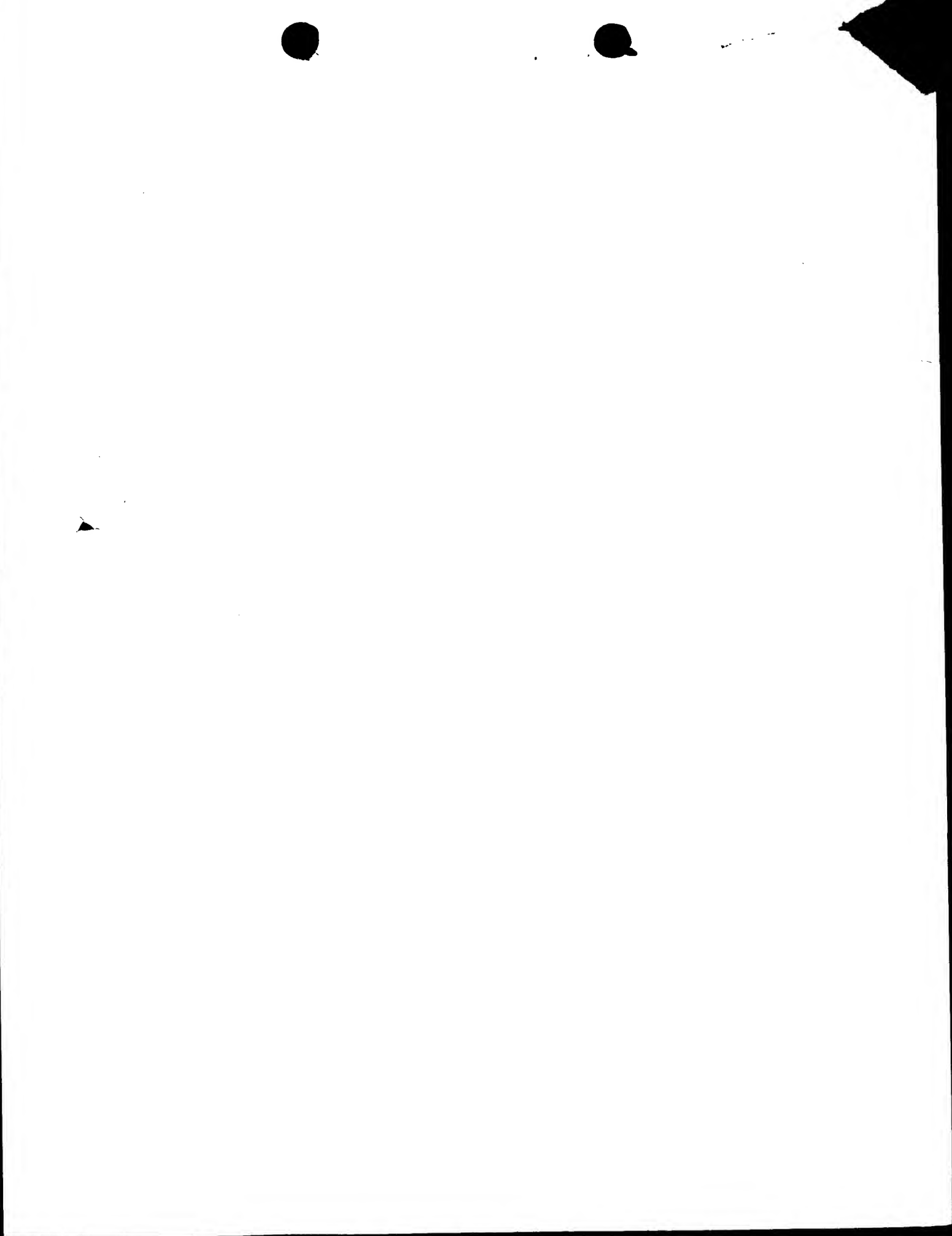
C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 56-116869, A (Shunpei Yamazaki), 12 September, 1981 (12. 09. 81), Full text (Family: none)	3



C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 10-242142, A (日本エー・エス・エム株式会 社), 11. 9月. 1998 (11. 09. 98), 第4欄第25-27行 (ファミリーなし)	1
A	JP, 63-206461, A (日本電信電話株式会社), 25. 8月. 1988 (25. 08. 88), 全文 (ファミリーなし)	3
A	JP, 56-116869, A (山崎舜平), 12. 9月. 1981 (12. 09. 81), 全文 (ファミリーなし)	3



EP



PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。		
国際出願番号 PCT/J P 99/01429	国際出願日 (日.月.年) 23.03.99	優先日 (日.月.年) 27.03.98	
出願人(氏名又は名称) 上野 智雄			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int CL⁶ H01L21/316, H01L21/318

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int CL⁶ H01L21/316, H01L21/318

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1957-1993

日本国公開実用新案公報 1972-1993

日本国登録実用新案公報 1994-1999

日本国実用新案登録公報 1996-1999

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 7-29898, A (大見忠弘), 31. 1月. 1995 (31. 01. 95), 全文, & WO, 9502896, A1 & EP, 709879, A1 & EP, 709879, A4	1、2、4、 5、6、7、 8、9
A	J P, 9-64176, A (沖電気工業株式会社), 7. 3月. 1997 (07. 03. 97), 第2欄, 第20-28行, 第3欄, 第2-17行, & EP, 788148, A1 & EP, 788148, A4	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15. 06. 99

国際調査報告の発送日

22.06.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

池淵 立

4 R 8831

電話番号 03-3581-1101 内線 3469



C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 10-242142, A (日本エー・エス・エム株式会社), 11. 9月. 1998 (11. 09. 98), 第4欄第25-27行 (ファミリーなし)	1
A	J P, 63-206461, A (日本電信電話株式会社), 25. 8月. 1988 (25. 08. 88), 全文 (ファミリーなし)	3
A	J P, 56-116869, A (山崎舜平), 12. 9月. 1981 (12. 09. 81), 全文 (ファミリーなし)	3



67
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)	Priority date (day/month/year) 27 March 1998 (27.03.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01L 21/316, 21/318		
Applicant TOKYO UNIVERSITY OF AGRICULTURE & TECHNOLOGY		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of _____ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 19 October 1999 (19.10.99)	Date of completion of this report 29 March 2000 (29.03.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

Form PCT/IPEA/409 (cover sheet) (July 1998)



I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/01429

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	8,9,11	YES
	Claims	1-7,10	NO
Inventive step (IS)	Claims	8,9,11	YES
	Claims	1-7,10	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The inventions described in Claims 1, 2, 4, 5, and 7 are identical to the inventions described in document 1 [JP, 7-29898, A (Tadahiro Ohmi), 31 January 1995 (31.01.95)]. In addition, document 1 describes the formation of an oxide film on a silicon substrate by the introduction of O₂ gas and an inert gas such as Ar and generating a plasma.

The inventions described in Claims 1, 2, 5, 6, and 7 are identical to the inventions described in document 2 [JP, 9-64176, A (Oki Electric Industry Co., Ltd.) 7 March 1997 (07.03.97)]. In addition, document 2 states that the ionization effectiveness of each source gas can be improved by providing an inert gas with a high ionization potential.

The inventions described in Claims 1, 3, 5, and 10 are identical to the inventions described in newly cited document 3 [JP, 5-217922, A (Siemens AG.) 27 August 1993 (27.08.93)]. Furthermore, document 3 describes the introduction of nitrogen and argon and/or helium, the formation of a metastable energy level in the inert gas by energy from microwaves, and transferring that energy level to the molecules of the reaction gas.

100-100-100

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference S 98/15	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP99/01955	International filing date (day/month/year) 20 March 1999 (20.03.99)	Priority date (day/month/year) 24 March 1998 (24.03.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07D 301/12		
Applicant SOLVAY (SOCIETE ANONYME)		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.	
2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.	
<input type="checkbox"/>	This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).
These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.	
3. This report contains indications relating to the following items:	
I <input checked="" type="checkbox"/>	Basis of the report
II <input type="checkbox"/>	Priority
III <input type="checkbox"/>	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
IV <input type="checkbox"/>	Lack of unity of invention
V <input checked="" type="checkbox"/>	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
VI <input type="checkbox"/>	Certain documents cited
VII <input checked="" type="checkbox"/>	Certain defects in the international application
VIII <input type="checkbox"/>	Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 14 October 1999 (14.10.99)	Date of completion of this report 23 May 2000 (23.05.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

RECEIVED

JAN 16 2001

PCT INITIAL PROCESSING

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):

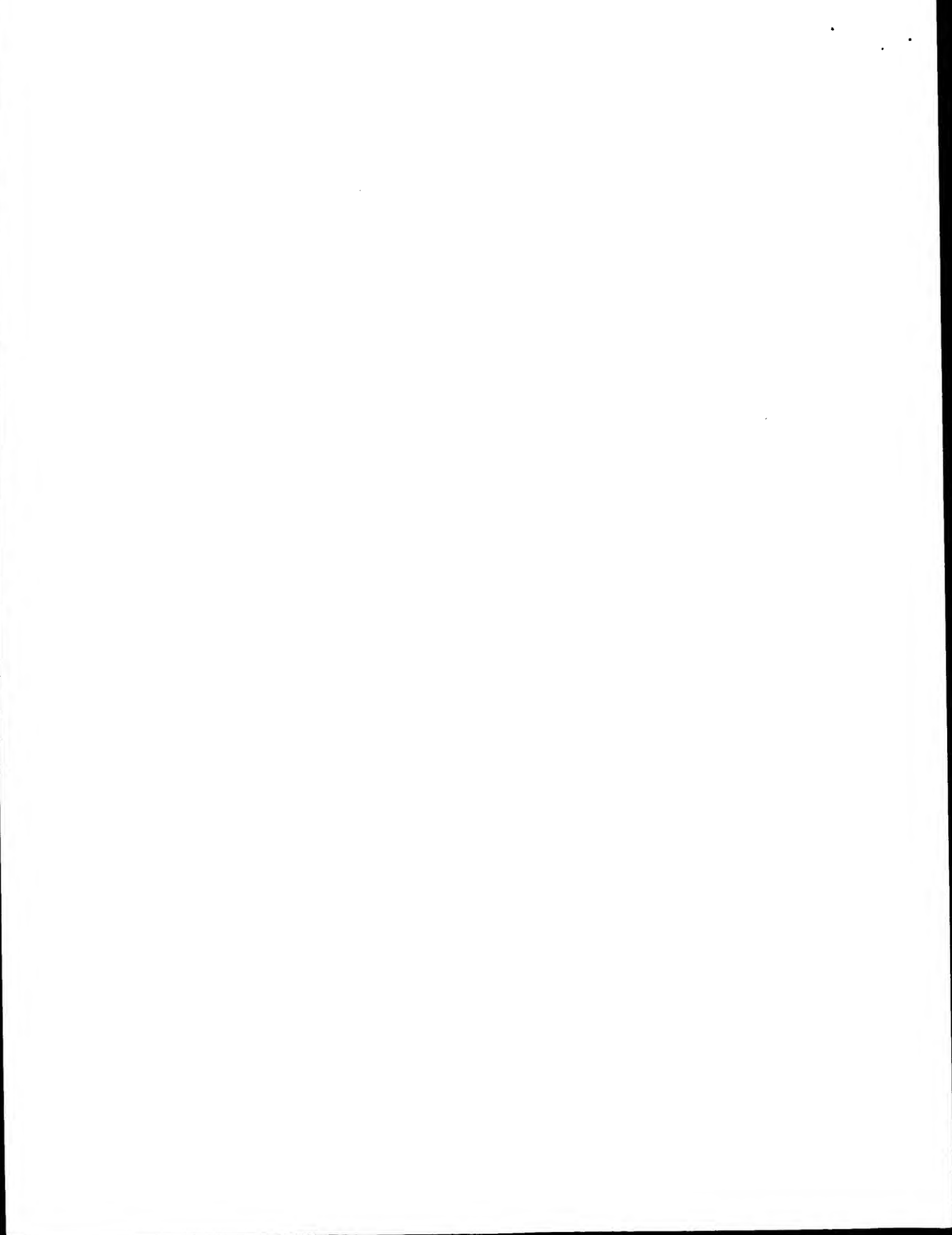
- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1-4, as originally filed,
pages _____, filed with the demand,
pages _____, filed with the letter of _____,
pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. _____, as originally filed,
Nos. _____, as amended under Article 19,
Nos. _____, filed with the demand,
Nos. 1-10, filed with the letter of 07 April 2000 (07.04.2000),
Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
sheets/fig _____, filed with the demand,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☒ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

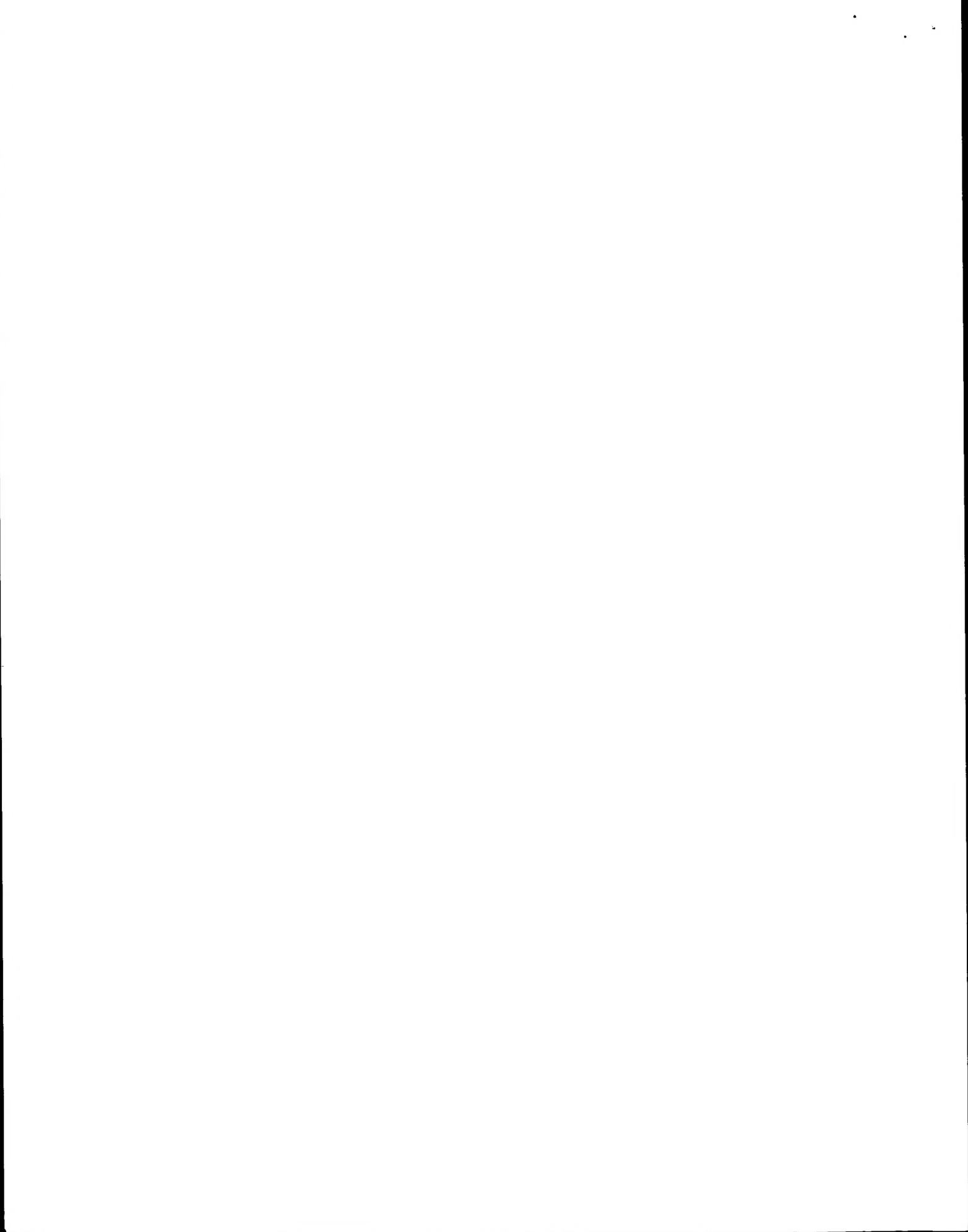


I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

Claim 1 has been amended to specify that the olefin is a **mono**-olefin; the support for this feature appears, in principle, to be found on page 3, line 21.

On page 3, lines 21-22, ethylene oxide is defined as being an organic compound comprising a grouping having a formula representing a 1,2-epoxy group. It is not specified how many epoxy groupings are contained in this organic compound. Consequently, the **mono**-olefin feature is not supported by the description and therefore this amendment goes beyond the disclosure of the invention as filed.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/01955

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	8, 10	YES
	Claims	1-7, 9	NO
Inventive step (IS)	Claims	10	YES
	Claims	8	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

1. Reference is made to the following documents:

- D1: EP-A-0 712 852 (ARCO CHEMICAL TECHNOLOGY), 22 May 1996
- D2: EP-A-0 757 043 (DEGUSSA AKTIENGESELLSCHAFT), 5 February 1997
- D3: EP-A-0 795 537 (ENICHEM S.P.A), 17 September 1997
- D4: EP-A-0 230 949 (ENIRICHERCHE S.P.A), 5 August 1987, cited in the application
- D5: CLERICI M G ET AL.: "Epoxidation of lower olefins with hydrogen peroxide and titanium silicalite", JOURNAL OF CATALYSIS, vol. 140, no. 1, 1 March 1993, pages 71-83, XP000562771

2. Prior art

Documents D1-D5 disclose a method for epoxidating olefins under zeolite catalysis in the presence of a solvent. Only documents D1 and D3 disclose a pH of the reaction medium, the other documents only mention the addition of a base in the reaction

[The body of the document is mostly blank, with some faint, illegible markings and a few small dark spots.]

medium without specifying pH values at all.

Documents D1 and D3 appear to be the prior art closest to the subject matter of the present application.

3. **Novelty** (PCT Article 33(2))

Document D1 implicitly discloses a reaction medium pH of 4-7.1 (cf. page 4, lines 31-32); none of the examples disclose pH values and nothing in that document would lead a person skilled in the art to seriously envisage working at a pH of 4.8-6.5. Therefore that document does not anticipate the subject matter of the present application.

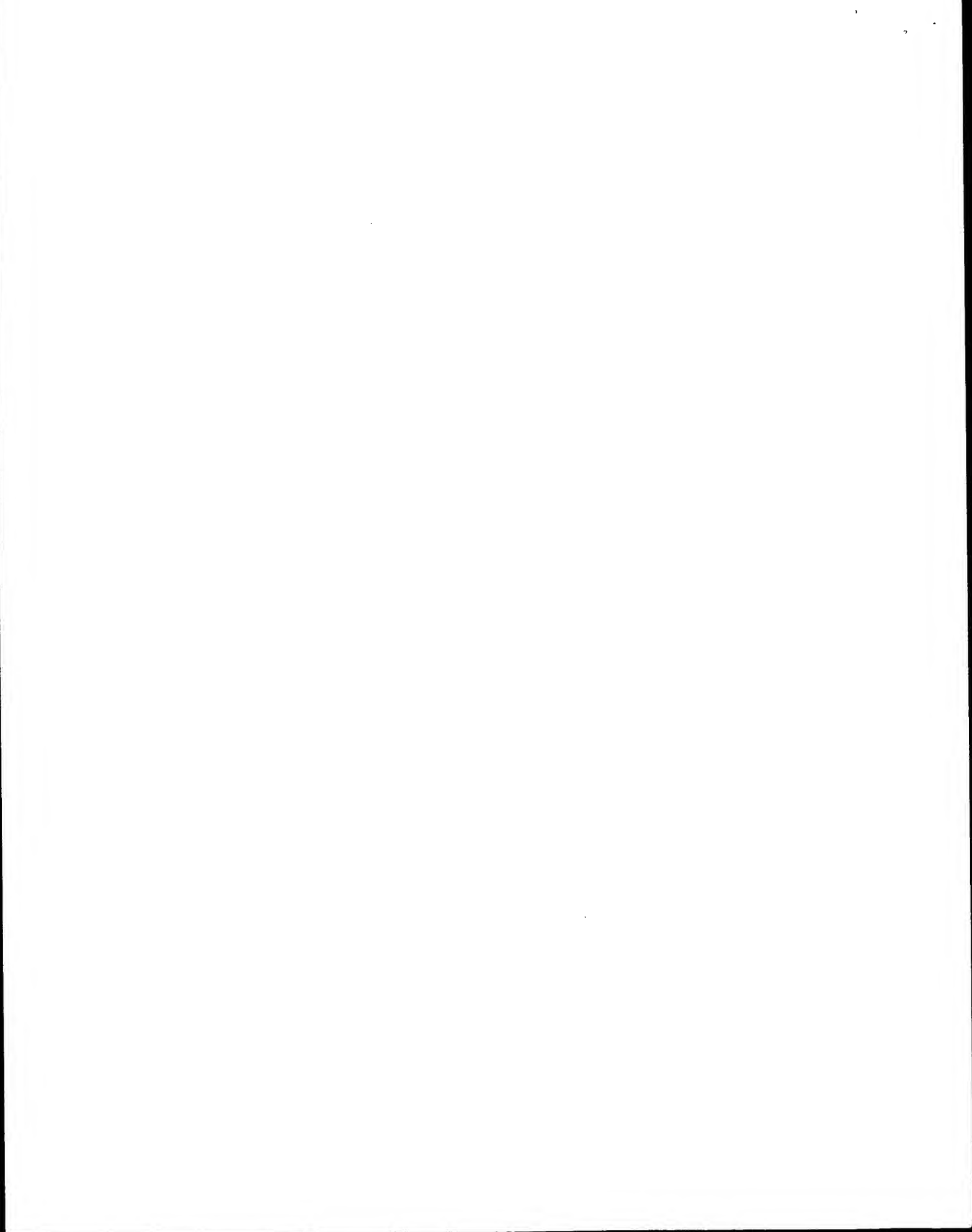
Document D3 discloses a reaction medium pH of 5-7 (cf. page 2, line 38), Example 1 discloses a pH of 6.5 and Examples 17 and 18 disclose pH values of 6.2 and 5.9; therefore, these examples anticipate the subject matter of Claims 1, 3-7 and 9. As regards Claim 7, document D2 discloses NH_4OH (a weak base, cf. page 2, last line).

In view of the examples and the disclosure of document D3, a person skilled in the art would have seriously envisaged working with the entire pH range of 5-7, and therefore the subject matter of Claim 2 is also anticipated.

The subject matter of Claims 1-7 and 9 does not fulfil the requirements of PCT Article 33(2).

3. **Inventive step** (PCT Article 33(3))

The subject matter of Claim 8 differs from document D3 in terms of the nature of the base (b):



- D2, strong bases: KOH, NaOH (cf. page 2, lines 57-59)

- application, weak base, sodium acetate.

Furthermore, it is noted that the use of strong bases such as NaOH and KOH and also weak bases such as NH_4OH is disclosed in the description of this application (cf. page 2, lines 7-8).

The feature (b) is merely one of several possibilities that a person skilled in the art might select when seeking to solve the stated problem according to each case and without an inventive step being involved (cf. document D5, page 77, second paragraph, the use of alkaline metal acetates improves the reaction performance; document D4, page 6, line 12, propylene).

The subject matter of Claim 8 does not fulfil the requirements of PCT Article 33(3).

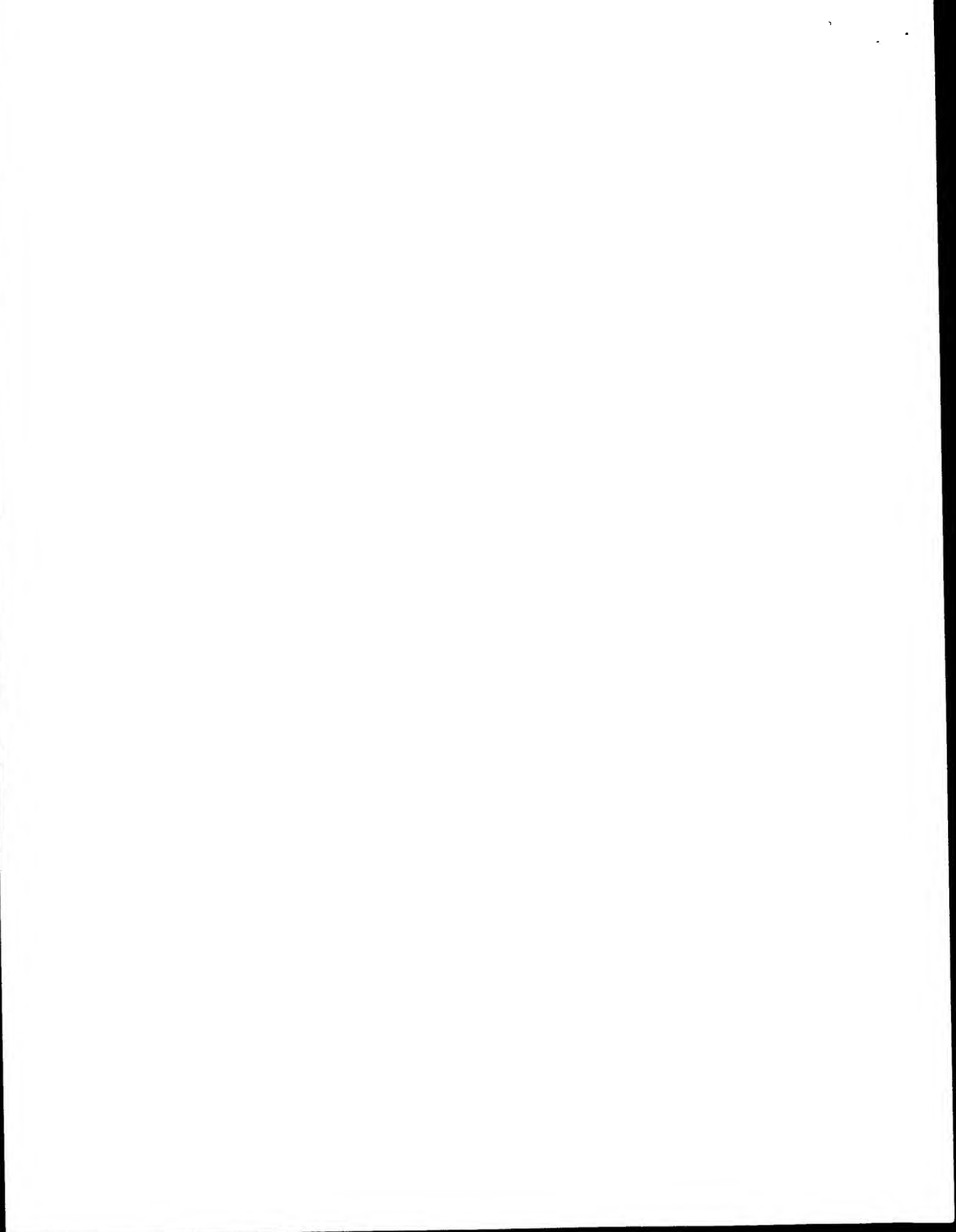
The subject matter of Claim 10 differs from document D3 in terms of the nature of the olefin (o):

- D3, (o)= butadiene
- application (o)= propylene

The problem that the present invention aims to solve can be considered to be that of developing a new method for producing epoxypropane with improved yields.

The solution proposed is that of using propylene (mono-olefin) instead of butadiene (di-olefin)

In their letter of 7.4.00, the applicants provided



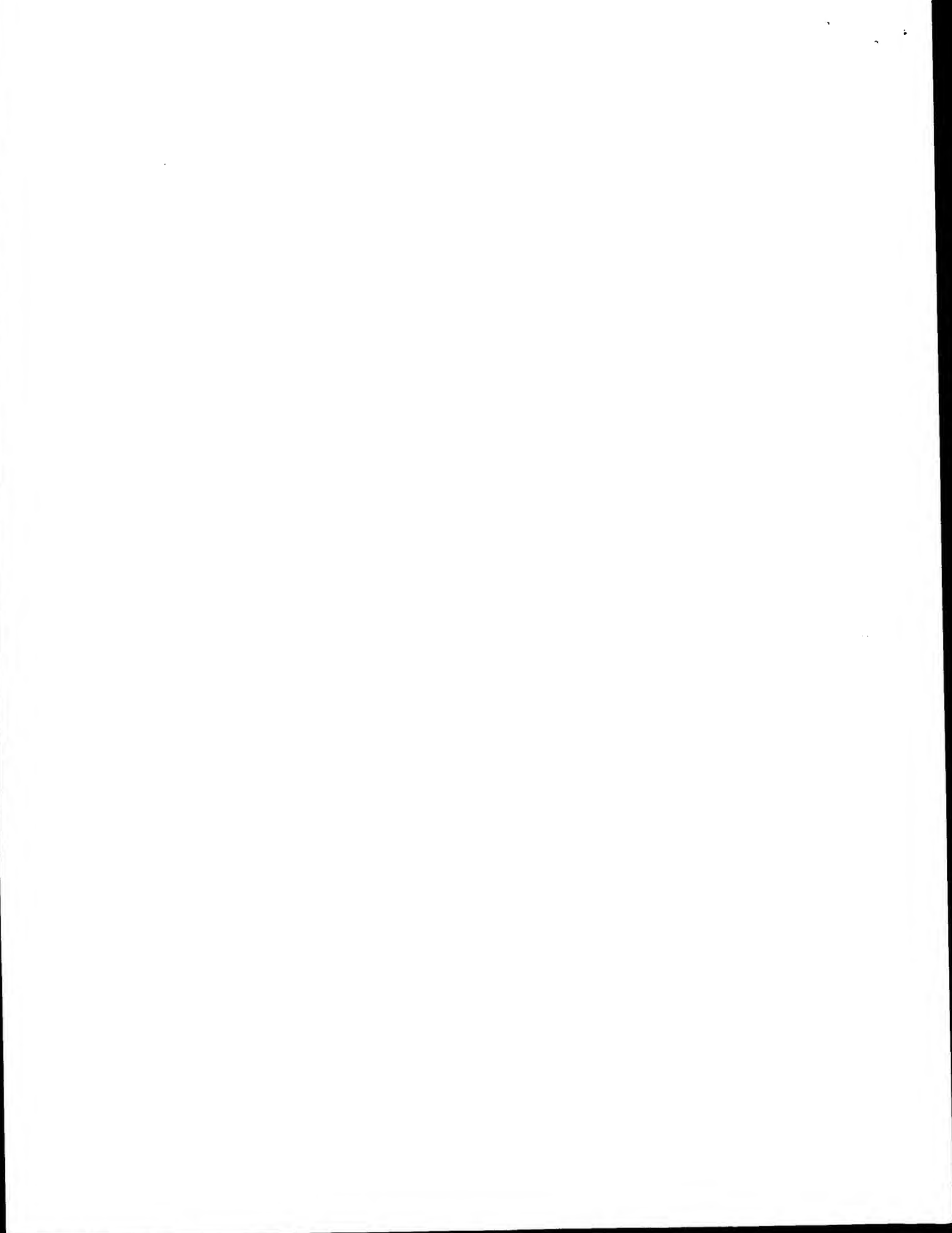
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 99/01955

yield values of 74-82% (Examples 1-3 of the application) which are greater than those of D3 (approximately 69%). This surprising increase in yield cannot be derived in an obvious manner from the prior art.

The subject matter of Claim 10 fulfils the requirements of PCT Article 33(2) and 33(3).



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

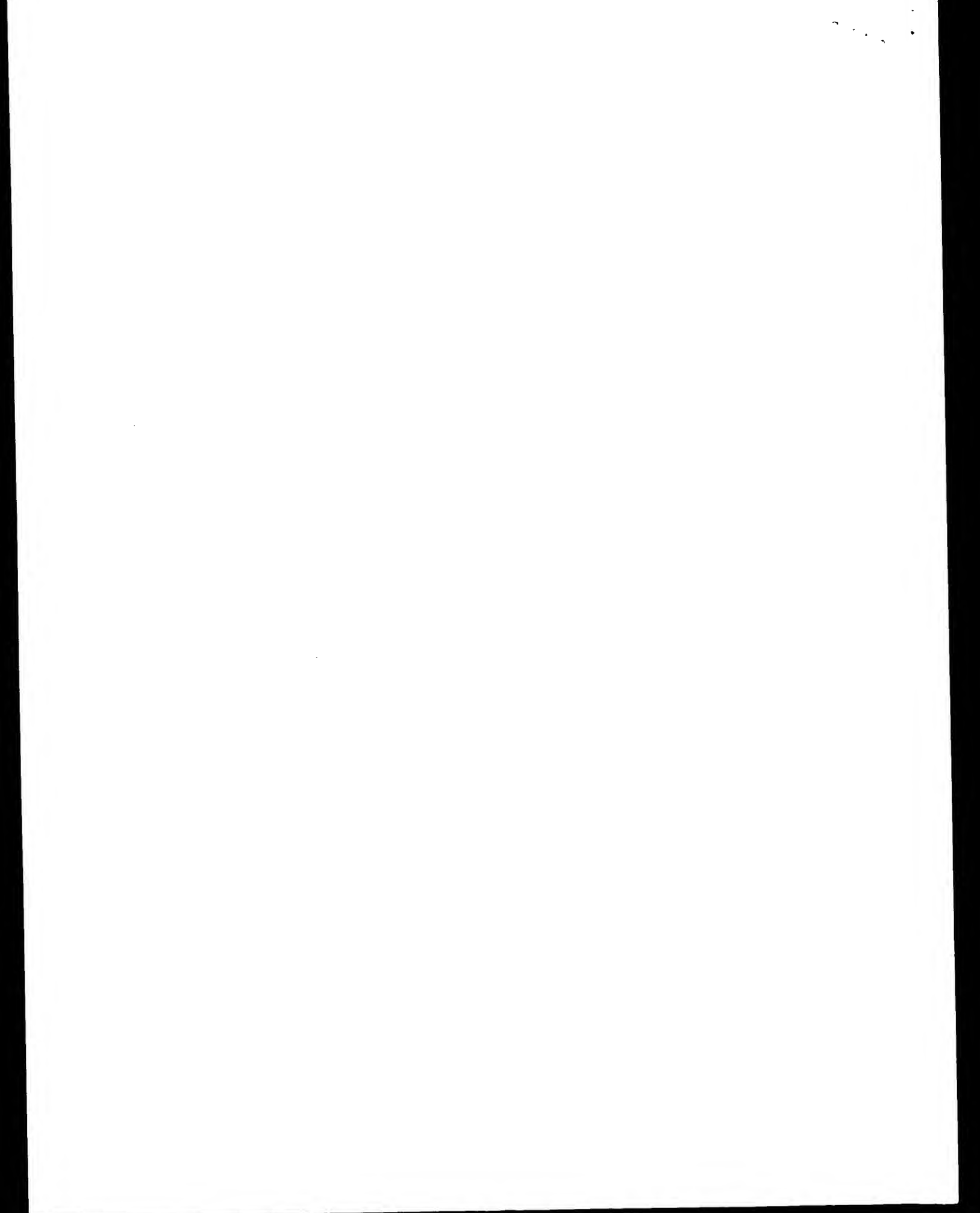
International application No.

PCT/EP 99/01955

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

Contrary to the requirements of PCT Rule 5.1 (a) (ii), the description does not outline the relevant prior art disclosed in documents D1-D3 and D5 and does not cite these documents.



67
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)	Priority date (day/month/year) 27 March 1998 (27.03.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01L 21/316, 21/318		
Applicant TOKYO UNIVERSITY OF AGRICULTURE & TECHNOLOGY		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.
- ☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of _____ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 19 October 1999 (19.10.99)	Date of completion of this report 29 March 2000 (29.03.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/01429

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	8,9,11	YES
	Claims	1-7,10	NO
Inventive step (IS)	Claims	8,9,11	YES
	Claims	1-7,10	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The inventions described in Claims 1, 2, 4, 5, and 7 are identical to the inventions described in document 1 [JP, 7-29898, A (Tadahiro Ohmi), 31 January 1995 (31.01.95)]. In addition, document 1 describes the formation of an oxide film on a silicon substrate by the introduction of O₂ gas and an inert gas such as Ar and generating a plasma.

The inventions described in Claims 1, 2, 5, 6, and 7 are identical to the inventions described in document 2 [JP, 9-64176, A (Oki Electric Industry Co., Ltd.) 7 March 1997 (07.03.97)]. In addition, document 2 states that the ionization effectiveness of each source gas can be improved by providing an inert gas with a high ionization potential.

The inventions described in Claims 1, 3, 5, and 10 are identical to the inventions described in newly cited document 3 [JP, 5-217922, A (Siemens AG.) 27 August 1993 (27.08.93)]. Furthermore, document 3 describes the introduction of nitrogen and argon and/or helium, the formation of a metastable energy level in the inert gas by energy from microwaves, and transferring that energy level to the molecules of the reaction gas.



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUGIMURA, Akihide
Kazan Building
2-4, Kasumigaseki 3-chome
Chiyoda-ku
Tokyo 100-0013
JAPON

Received

MAY. 29. 2000

SUGIMURA

Date of mailing (day/month/year) 05 May 2000 (05.05.00)	Applicant's or agent's file reference
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)

IMPORTANT NOTIFICATION

1. The following indications appeared on record concerning:

☐ the applicant
 ☐ the inventor
 ☒ the agent
 ☐ the common representative

Name and Address 	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☒ the person
 ☐ the name
 ☐ the address
 ☐ the nationality
 ☐ the residence


Name and Address 1) SUGIMURA, Akihide 2) SUGIMURA, Kosaku Kazan Building 2-4, Kasumigaseki 3-chome Chiyoda-ku Tokyo 100-0013 Japan	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

3. Further observations, if necessary:

The persons in Box 2 have been appointed as agents.

4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office
 ☐ the designated Offices concerned
☐ the International Searching Authority
 ☒ the elected Offices concerned
☐ the International Preliminary Examining Authority
 ☐ other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer  Masashi HONDA Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

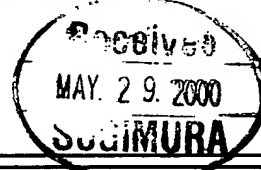
NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SUGIMURA, Akihide
Kazan Building
2-4, Kasumigaseki 3-chome
Chiyoda-ku
Tokyo 100-0013
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 05 May 2000 (05.05.00)	
Applicant's or agent's file reference	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)

1. The following indications appeared on record concerning: <input checked="" type="checkbox"/> the applicant <input type="checkbox"/> the inventor <input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative		
Name and Address	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning: <input checked="" type="checkbox"/> the person <input type="checkbox"/> the name <input type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence		
Name and Address TOKYO UNIVERSITY OF AGRICULTURE & TECHNOLOGY 3-8-1, Harumi-cho Fuchu-shi Tokyo 183-8538 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary: The applicant identified in Box 2 should be included on the record as an additional applicant for all designated States except US.		
4. A copy of this notification has been sent to: <div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div> <input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office <input type="checkbox"/> the International Searching Authority <input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority </div> <div> <input type="checkbox"/> the designated Offices concerned <input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned <input type="checkbox"/> other: </div> </div>		

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer <div style="text-align: center;"> Masashi HONDA </div> Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---



PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

SUGIMURA, Akihide
Kazan Building
2-4, Kasumigaseki 3-chome
Chiyoda-ku
Tokyo 100-0013
JAPON

Received

MAY. 29. 2000

SUGIMURA

Date of mailing (day/month/year) 05 May 2000 (05.05.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference	
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)

1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☒ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address UENO, Tomo Room No. 3509 2-11, Tsukuda 2-chome Chuo-ku Tokyo 104-0051 Japan (Applicant and Inventor for all designated States)	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:


☒ the person ☐ the name ☐ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address UENO, Tomo Room No. 3509 2-11, Tsukuda 2-chome Chuo-ku Tokyo 104-0051 Japan (Applicant for US Only and Inventor for all designated States)	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer  Masashi HONDA Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

**NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT**

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

UENO, Tomo
Room No. 3509
2-11, Tsukuda 2-chome
Chuo-ku
Tokyo 104-0051
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 26 May 1999 (26.05.99)	
Applicant's or agent's file reference	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 27 March 1998 (27.03.98)
Applicant UENO, Tomo	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
27 Marc 1998 (27.03.98)	10/122661	JP	21 May 1999 (21.05.99)

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer</p> <p style="text-align: center;">Carlos Naranjo</p> <p>Telephone No. (41-22) 338.83.38</p>
---	--



PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF RECEIPT OF RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

To:

UENO, Tomo
Room No. 3509
2-11, Tsukuda 2-chome
Chuo-ku
Tokyo 104-0051
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 13 April 1999 (13.04.99)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference	International application No. PCT/JP99/01429

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

UENO, Tomo (all designated States)

International filing date	:	23 March 1999 (23.03.99)
Priority date(s) claimed	:	27 March 1998 (27.03.98)
Date of receipt of the record copy by the International Bureau	:	06 April 1999 (06.04.99)
List of designated Offices	:	

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE
 National : AU, CA, CN, KR, US

ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
- ☒ confirmation of precautionary designations
- ☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer: <div style="text-align: right; padding-right: 20px;">K. Takeda</div> <div style="text-align: right; padding-right: 20px;"> </div> Telephone No. (41-22) 338.83.38
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	



INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated in the Notification of Receipt of Record Copy (Form PCT/IB/301) by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by the applicable national laws.

The time limit for performing these procedural acts is 20 MONTHS from the priority date or, for those designated States which the applicant elects in a demand for international preliminary examination or in a later election, 30 MONTHS from the priority date, provided that the election is made before the expiration of 19 months from the priority date. Some designated (or elected) Offices have fixed time limits which expire even later than 20 or 30 months from the priority date. In other Offices an extension of time or grace period, in some cases upon payment of an additional fee, is available.

In addition to these procedural acts, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure that the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most designated Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

For detailed information about the procedural acts to be performed to enter the national phase before each designated Office, the applicable time limits and possible extensions of time or grace periods, and any other requirements, see the relevant Chapters of Volume II of the PCT Applicant's Guide. Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in Chapter IX of Volume I of the PCT Applicant's Guide.

GR and ES became bound by PCT Chapter II on 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, and may, therefore, be elected in a demand or a later election filed on or after 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, regardless of the filing date of the international application. (See second paragraph above.)

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

CONFIRMATION OF PRECAUTIONARY DESIGNATIONS

This notification lists only specific designations made under Rule 4.9(a) in the request. It is important to check that these designations are correct. Errors in designations can be corrected where precautionary designations have been made under Rule 4.9(b). The applicant is hereby reminded that any precautionary designations may be confirmed according to Rule 4.9(c) before the expiration of 15 months from the priority date. If it is not confirmed, it will automatically be regarded as withdrawn by the applicant. There will be no reminder and no invitation. Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying the designated State concerned (with an indication of the kind of protection or treatment desired) and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.

REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS

For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 16 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 16-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 16-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.


Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 16-month time limit is the filing date of the earliest application whose priority is claimed.



特許協力条約に基づく国際出願

願 書

出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。

国際出願番号	受理官庁記入欄
国際出願日	
(受付印)	
出願人又は代理人の書類記号 (希望する場合、最大12字)	

第 I 欄 発明の名称

成膜方法

第 II 欄 出願人

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

上野智雄 Ueno Tomo
〒104-0051 日本国東京都中央区佃2丁目
2番11号 3509号室
Room No. 3509, 2-11, Tsukuda 2-Chome,
Chuo-ku, Tokyo 104-0051, JAPAN

☒ この欄に記載した者は、
発明者でもある。

電話番号:
03-3534-1390

ファクシミリ番号:
03-3534-1390

加入電話番号:

国籍 (国名): 日本国 JAPAN

住所 (国名): 日本国 JAPAN

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である: ☒ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 追記欄に記載した指定国

第 III 欄 その他の出願人又は発明者

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

この欄に記載した者は
次に該当する:

- ☐ 出願人のみである。
☐ 出願人及び発明者である。
☐ 発明者のみである。
(ここにレ印を付したとき
は、以下に記入しないこと)

国籍 (国名):

住所 (国名):

この欄に記載した者は、次の
指定国についての出願人である: ☐ すべての指定国 ☐ 米国を除くすべての指定国 ☐ 米国のみ ☐ 追記欄に記載した指定国

☐ その他の出願人又は発明者が縦覧に記載されている。

第 IV 欄 代理人又は共通の代表者、通知のあて名

次に記載された者は、国際機関において出願人のために行動する: ☐ 代理人 ☐ 共通の代表者

氏名 (名称) 及びあて名: (姓・名の順に記載; 法人は公式の完全な名称を記載; あて名は郵便番号及び国名も記載)

電話番号:

ファクシミリ番号:

加入電話番号:

☐ 通知のためのあて名: 代理人又は共通の代表者が選任されておらず、上記枠内に特に通知が送付されるあて名を記載している場合は、レ印を付す



第V欄 国の指定

規則 4.9(a)の規定に基づき次の指定を付するに付、必ずしも1つの国に指定すること。

広域半島等

- ☐ **AP** **ARIP** 半島等: **GH** ガーナ Ghana, **GM** ガンビア Gambia, **KE** ケニア Kenya, **LS** レソト Lesotho, **MW** マラウイ Malawi, **SD** スーダン Sudan, **SZ** スワジランド Swaziland, **UG** ウガンダ Uganda, **ZW** ジンバブエ Zimbabwe, 及びハラレプロトコルと特許協力条約の締結国である他の国
- ☐ **EA** ユーラシア半島等: **AM** アルメニア Armenia, **AZ** アゼルバイジャン Azerbaijan, **BY** ベラルーシ Belarus, **KG** キルギス Kyrgyzstan, **KZ** カザフスタン Kazakhstan, **MD** モルドヴァ Republic of Moldova, **RU** ロシア Russian Federation, **TJ** タジキスタン Tajikistan, **TM** トルクメニスタン Turkmenistan; 及びユーラシア特許条約と特許協力条約の締結国である他の国
- ☒ **EP** ヨーロッパ半島等: **AT** オーストリア Austria, **BE** ベルギー Belgium, **CH** and **LI** スイス及びリヒテンシュタイン Switzerland and Liechtenstein, **CY** キプロス Cyprus, **DE** ドイツ Germany, **DK** デンマーク Denmark, **ES** スペイン Spain, **FI** フィンランド Finland, **FR** フランス France, **GB** 英国 United Kingdom, **GR** ギリシャ Greece, **IE** アイルランド Ireland, **IT** イタリア Italy, **LU** ルクセンブルグ Luxembourg, **MC** モナコ Monaco, **NL** オランダ Netherlands, **PT** ポルトガル Portugal, **SE** スウェーデン Sweden, 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締結国である他の国
- ☐ **OA** **OAPI** 半島等: **BF** ブルキナ・ファソ Burkina Faso, **BJ** ベナン Benin, **CF** 中央アフリカ Central African Republic, **CG** コンゴ Congo, **CI** コートジボワール Côte d'Ivoire, **CM** カメルーン Cameroon, **GA** ガボン Gabon, **GN** ギニア Guinea, **ML** マリ Mali, **MR** モーリタニア Mauritania, **NE** ニジェール Niger, **SN** セネガル Senegal, **TD** チャード Chad, **TG** トーゴ Togo, 及びアフリカ知的所有権機構のメンバー国と特許協力条約の締結国である他の国 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には点線の上に記載する)

(他の種類の保護又は取扱いを求める場合には点線の上に記載する)

- | | |
|---|--|
| <input type="checkbox"/> AL アルバニア Albania | <input type="checkbox"/> LT リトアニア Lithuania |
| <input type="checkbox"/> AM アルメニア Armenia | <input type="checkbox"/> LU ルクセンブルグ Luxembourg |
| <input type="checkbox"/> AT オーストリア Austria | <input type="checkbox"/> LV ラトヴィア Latvia |
| <input checked="" type="checkbox"/> AU オーストラリア Australia | <input type="checkbox"/> MD モルドヴァ Republic of Moldova |
| <input type="checkbox"/> AZ アゼルバイジャン Azerbaijan | <input type="checkbox"/> MG マダガスカル Madagascar |
| <input type="checkbox"/> BA ボスニア・ヘルツェゴヴィナ Bosnia and Herzegovina | <input type="checkbox"/> MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国 The former Yugoslav Republic of Macedonia |
| <input type="checkbox"/> BB バルバドス Barbados | <input type="checkbox"/> MN モンゴル Mongolia |
| <input type="checkbox"/> BG ブルガリア Bulgaria | <input type="checkbox"/> MW マラウイ Malawi |
| <input type="checkbox"/> BR ブラジル Brazil | <input type="checkbox"/> MX メキシコ Mexico |
| <input type="checkbox"/> BY ベラルーシ Belarus | <input type="checkbox"/> NO ノールウェー Norway |
| <input checked="" type="checkbox"/> CA カナダ Canada | <input type="checkbox"/> NZ ニュー・ジーランド New Zealand |
| <input type="checkbox"/> CH and LI スイス及びリヒテンシュタイン Switzerland and Liechtenstein | <input type="checkbox"/> PL ポーランド Poland |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN 中国 China | <input type="checkbox"/> PT ポルトガル Portugal |
| <input type="checkbox"/> CU キューバ Cuba | <input type="checkbox"/> RO ルーマニア Romania |
| <input type="checkbox"/> CZ チェッコ Czech Republic | <input type="checkbox"/> RU ロシア Russian Federation |
| <input type="checkbox"/> DE ドイツ Germany | <input type="checkbox"/> SD スーダン Sudan |
| <input type="checkbox"/> DK デンマーク Denmark | <input type="checkbox"/> SE スウェーデン Sweden |
| <input type="checkbox"/> EE エストニア Estonia | <input type="checkbox"/> SG シンガポール Singapore |
| <input type="checkbox"/> ES スペイン Spain | <input type="checkbox"/> SI スロヴェニア Slovenia |
| <input type="checkbox"/> FI フィンランド Finland | <input type="checkbox"/> SK スロヴァキア Slovakia |
| <input type="checkbox"/> GB 英国 United Kingdom | <input type="checkbox"/> SL シェラ・レオネ Sierra Leone |
| <input type="checkbox"/> GE グルジア Georgia | <input type="checkbox"/> TJ タジキスタン Tajikistan |
| <input type="checkbox"/> GH ガーナ Ghana | <input type="checkbox"/> TM トルクメニスタン Turkmenistan |
| <input type="checkbox"/> GM ガンビア Gambia | <input type="checkbox"/> TR トルコ Turkey |
| <input type="checkbox"/> GW ギニア・ビサウ Guinea-Bissau | <input type="checkbox"/> TT トリニダード・トバゴ Trinidad and Tobago |
| <input type="checkbox"/> HR クロアチア Croatia | <input type="checkbox"/> UA ウクライナ Ukraine |
| <input type="checkbox"/> HU ハンガリー Hungary | <input type="checkbox"/> UG ウガンダ Uganda |
| <input type="checkbox"/> ID インドネシア Indonesia | <input checked="" type="checkbox"/> US 米国 United States of America |
| <input type="checkbox"/> IL イスラエル Israel | <input type="checkbox"/> UZ ウズベキスタン Uzbekistan |
| <input type="checkbox"/> IS アイスランド Iceland | <input type="checkbox"/> VN ヴィエトナム Viet Nam |
| <input type="checkbox"/> JP 日本 Japan | <input type="checkbox"/> YU ユーゴスラヴィア Yugoslavia |
| <input type="checkbox"/> KE ケニア Kenya | <input type="checkbox"/> ZW ジンバブエ Zimbabwe |
| <input type="checkbox"/> KG キルギス Kyrgyzstan | |
| <input checked="" type="checkbox"/> KR 韓国 Republic of Korea | |
| <input type="checkbox"/> KZ カザフスタン Kazakhstan | |
| <input type="checkbox"/> LC セント・ルシア Saint Lucia | |
| <input type="checkbox"/> LK スリ・ランカ Sri Lanka | |
| <input type="checkbox"/> LR リベリア Liberia | |
| <input type="checkbox"/> LS レソト Lesotho | |

以下の国は、この様式の施行後に特許協力条約の締結国となった国を指定 (国内特許のために) するためのものである

確認の指定の宣言: 出願人は、上記の指定に加えて、規則 4.9(b)の規定に基づき、特許協力条約の下で認められる他の全ての国の指定を行う。ただし、この宣言から除外の表示を追記欄にした国は、指定から除かれる。出願人は、これらの追加される指定が確認を条件としていること、並びに優先日から15月が経過する前にその確認がなされない指定は、この期間の経過時に、出願人によって取り下げられたものとみなされることを宣言する。(指定の確認は、指定を特許する通知の提出と指定手数料及び確認手数料の納付からなる。この確認は、優先日から15月以内に受理官庁へ提出しなければならない。)



第VI欄 優先権主張		<input type="checkbox"/> 他の特許権の主張（先の出願）が追記欄に記載されている		
先の出願日 (日、月、年)	先の出願番号	先の出願		
		国内出願：国名	広域出願：*広域官庁名	国際出願：受理官庁名
(1) 27.03.98	平成10年特許願 第122661号	日本国 JAPAN		
(2)				
(3)				


☒ 上記()の番号の先の出願（ただし、本国際出願が提出される受理官庁に対して提出されたものに限る）のうち、次の()の番号のものについては、出願書類の認証謄本を作成し国際事務局へ送付することを、受理官庁（日本国特許庁の長官）に対して請求している。

(1)

*先の出願が、ARIPOの特許出願である場合には、その先の出願を行った工業所有権の保護のためのパリ条約同盟国の少なくとも1ヶ国を追記欄に表示しなければならない（規則4.10(b)(ii)）。追記欄を参照。

第VII欄 国際調査機関	
国際調査機関（ISA）の選択	先の出願結果の利用請求：当該調査の照会（先の出願が、国際調査機関によって既に実施又は請求されている場合）
ISA/J P	出願日（日、月、年） 出願番号 国名（又は広域官庁）

第VIII欄 照会欄：出願の書面	
この国際出願の用紙の枚数は次のとおりである。	この国際出願には、以下にチェックした書類が添付されている。
願書 3 枚	1. <input checked="" type="checkbox"/> 手数料計算用紙
明細書（配列表を除く）..... 17 枚	2. <input checked="" type="checkbox"/> 納付する手数料に相当する特許印紙を貼付した書面
請求の範囲 2 枚	3. <input checked="" type="checkbox"/> 国際事務局の口座への振込みを証明する書面
要約書 1 枚	4. <input type="checkbox"/> 別紙の記名押印された委任状
図面 7 枚	5. <input type="checkbox"/> 包括委任状の写し
明細書の配列表 枚	6. <input type="checkbox"/> 記名押印（署名）の説明書
合計 30 枚	7. <input type="checkbox"/> 優先権書類（上記第VI欄の()の番号を記載する）
要約書とともに提示する図面： <input checked="" type="checkbox"/> 1	8. <input type="checkbox"/> 国際出願の翻訳文（翻訳に使用した言語名を記載する）
本国際出願の使用言語名：日本語	9. <input type="checkbox"/> 寄託した微生物又は他の生物材料に関する書面
	10. <input type="checkbox"/> スクレオチド又はアミノ酸配列表（フレキシブルディスク）
	11. <input checked="" type="checkbox"/> その他（書類名を詳細に記載する）
	優先権書類送付請求書

第IX欄 提出者の記名押印	
人の氏名（名称）を記載し、その次に押印する。	
上野 智雄 	

1. 国際出願として提出された書類の実際の受理の日		2. 図面	
3. 国際出願として提出された書類を補充する書類又は図面であって その後期間内に提出されたものの実際の受理の日（訂正日）		<input type="checkbox"/> 受理された	
4. 特許協力条約第11条(2)に基づく必要な補充の期間内の受理の日		<input type="checkbox"/> 不足図面がある	
5. 出願人により特定された 国際調査機関	ISA/J P	6. <input type="checkbox"/> 調査手数料未払いにつき、国際調査機関に 調査用写しを送付していない	

国際事務局記入欄	
記録原本の受理の日	



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

UENO, Tomo
Room No. 3509
2-11, Tsukuda 2-chome
Chuo-ku
Tokyo 104-0051
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 07 October 1999 (07.10.99)		
Applicant's or agent's file reference		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)	
Priority date (day/month/year) 27 March 1998 (27.03.98)		
Applicant UENO, Tomo		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

AU,CN,EP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CA

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 07 October 1999 (07.10.99) under No. WO 99/50899

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

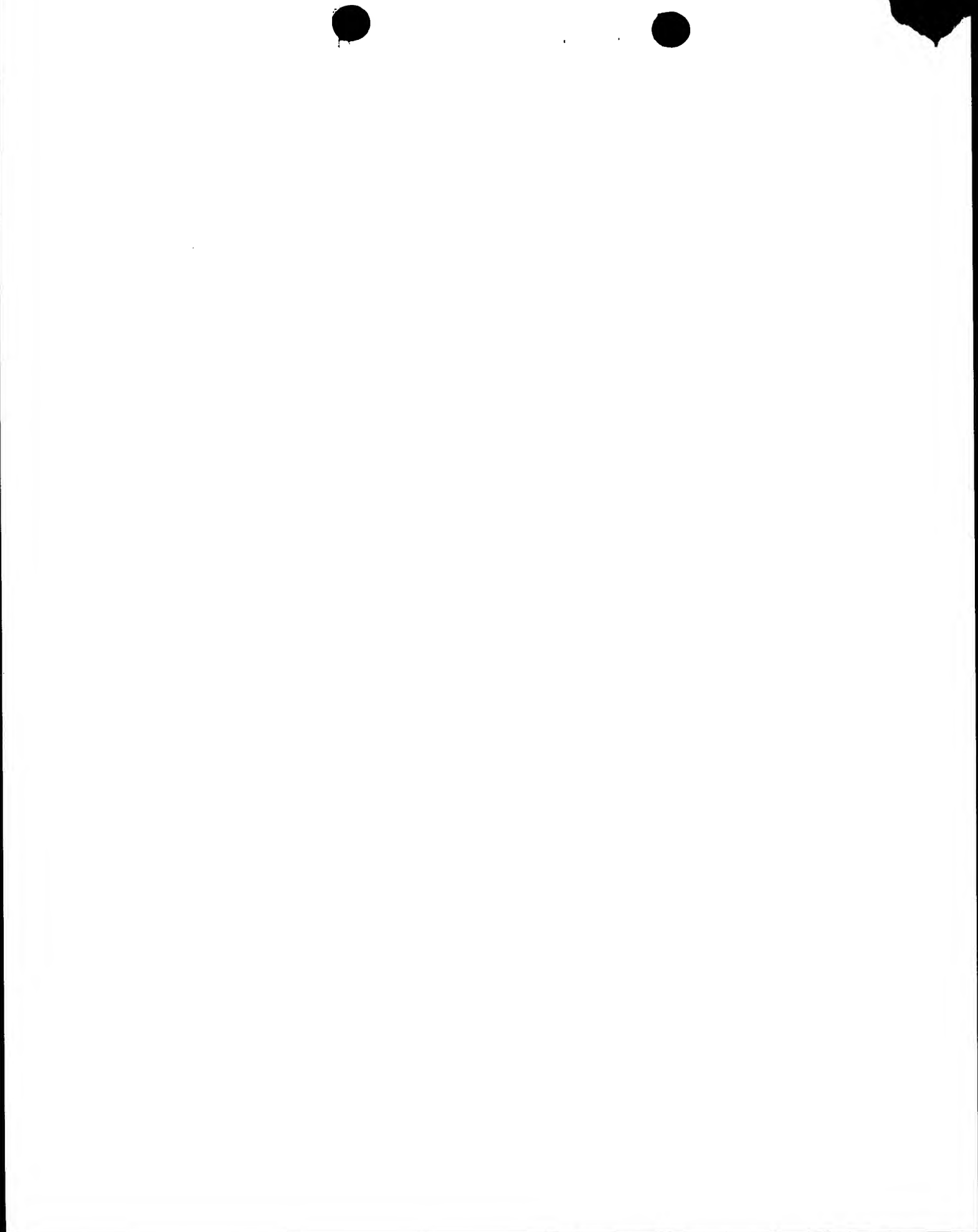
Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38



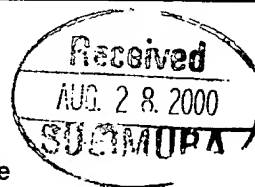
PCT
NOTIFICATION OF TRANSMITTAL
OF COPIES OF TRANSLATION
OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY
EXAMINATION REPORT

(PCT Rule 72.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SUGIMURA, Akihide
 Kazan Building
 2-4, Kasumigaseki 3-chome
 Chiyoda-ku
 Tokyo 100-0013
 JAPON



Date of mailing (day/month/year) 17 August 2000 (17.08.00)	
Applicant's or agent's file reference	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP99/01429	International filing date (day/month/year) 23 March 1999 (23.03.99)
Applicant TOKYO UNIVERSITY OF AGRICULTURE & TECHNOLOGY et al	

1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,AU,CA,CN,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

KR

3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer Luis Hernandez Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---



P C T

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 14 APR 2000

WIPO PCT

出願人又は代理人 の書類記号	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。		
国際出願番号 PCT/J P 99/01429	国際出願日 (日.月.年) 23. 03. 99	優先日 (日.月.年) 27. 03. 98	
国際特許分類 (IPC) Int. Cl ⁷ H01L21/316, H01L21/318			
出願人 (氏名又は名称) 上野 智雄			

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 19. 10. 99	国際予備審査報告を作成した日 29. 03. 00		
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 池淵 立	4 R	8831
電話番号 03-3581-1101 内線 3469			

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)



1. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)



V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	8, 9, 11	有
	請求の範囲	1-7, 10	無
進歩性(IS)	請求の範囲	8, 9, 11	有
	請求の範囲	1-7, 10	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-11	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求項1、2、4、5、7に記載された発明は、文献1(JP, 7-29898, A(大見忠弘), 31. 1月. 1995(31. 01. 95))に記載された発明と同一である。なお、文献1には、O₂ガスとArガス等の不活性ガスを導入しプラズマにすることによりシリコン基板上に酸化膜を形成するものが記載されている。

請求項1、2、5、6、7に記載された発明は、文献2(JP, 9-64176, A(沖電気工業株式会社), 7. 3月. 1997(07. 03. 97))に記載された発明と同一である。なお、文献2の段落0013には、電離ポテンシャルの高い不活性ガスを供給することにより、各ソースガスの解離効果を向上させることができることが記載されている。

請求項1、3、5、10に記載された発明は新たに引用する文献3(JP, 5-217922, A(シーメンス アクチエンゲゼルシャフト), 27. 8月. 1993(27. 08. 93))に記載の発明と同一である。なお、文献3には、窒素と、アルゴンまたは/及びヘリウムを導入し、マイクロ波のエネルギーにより不活性ガスを準安定状態とし、これを反応ガスの分子に伝達することが記載されている。





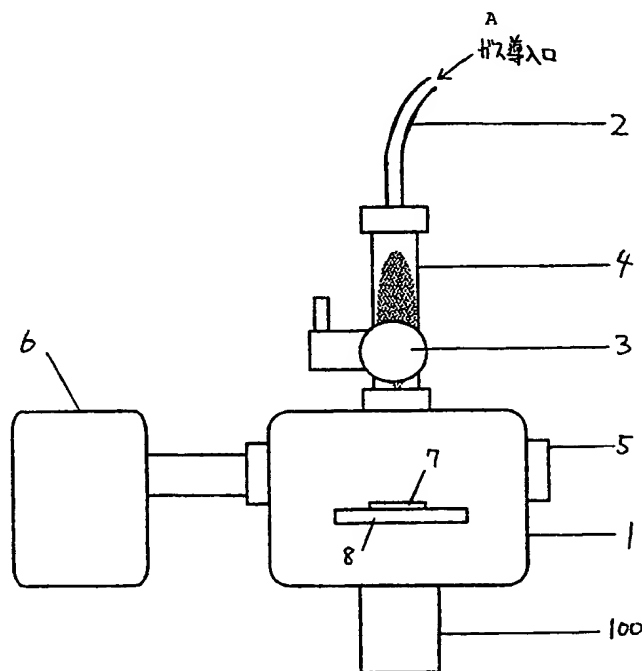
(51) 国際特許分類6 H01L 21/316, 21/318	A1	(11) 国際公開番号 WO99/50899 (43) 国際公開日 1999年10月7日(07.10.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/01429 (22) 国際出願日 1999年3月23日(23.03.99) (30) 優先権データ 特願平10/122661 1998年3月27日(27.03.98) JP (71) 出願人; および (72) 発明者 上野智雄(UENO, Tomo)[JP/JP] 〒104-0051 東京都中央区佃2丁目2番11号 3509号室 Tokyo, (JP)		(81) 指定国 AU, CA, CN, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE) 添付公開書類 国際調査報告書

(54)Title: METHOD FOR FORMING FILM

(54)発明の名称 成膜方法

(57) Abstract

In a film-forming process comprising depositing a molecule composed of a plurality of atoms on a substrate or reacting the molecule with an atom in the substrate to produce a compound, an improvement which comprises generating plasma in an atmosphere of a mixed gas of the molecule with an inert gas having a metastable energy level higher than the energy required for transferring the molecule to an atomic state, to thereby dissociate the molecule into atoms in advance prior to forming a film. This eliminates the need for dissociation of the molecule on the substrate and allows the practice of the film-forming process at a low temperature.



A ... INLET FOR GAS

複数原子から構成される分子を基板上に堆積、もしくは基板原子と反応させて化合物を作製する成膜プロセスにおいて、分子の原子状に必要なエネルギーよりも高い準安定エネルギー準位を有する不活性ガスと分子との混合ガス雰囲気中でプラズマを発生させ、成膜前にあらかじめ分子を原子状に解離させる。その結果、基板上での分子の解離が不要となり、成膜プロセスを低温化できる。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャード
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BJ	ベナン	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサオ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BY	ベラルーシ	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HR	クロアチア		共和国	TR	トルコ
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MW	マラウイ	US	米国
CM	カメルーン	IN	インド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明細書

成膜方法

[技術分野]

本発明は成膜方法に関する。

[背景技術]

材料・デバイス開発における成膜技術の役割は大きい。中でもULSIをはじめとする電子デバイスでは、微細加工技術を駆使した超高集積化の流れの中で、新しい成膜技術の確立が求められている。従来から、材料・デバイス開発における成膜方法としては、CVD法などに代表されるような、基板上に作製する膜の構成元素すべてを外部から供給する手法や、熱酸化法などに代表されるような、外部から供給する元素を基板原子と反応させ成膜する手法が用いられている。両者とも、外部から供給する元素は、分子状の形態で真空容器内導入されているのが現状である。

近年の素子の微細化は、その成膜プロセスにも大きな制限を課すようになり、特に、プロセス温度の低温化の要求が深刻になってきている。プロセス温度が高温である大きな要因の一つとして、外部から供給する元素を分子状で供給していることが挙げられる。すなわち、成膜に本来必要なものは、供給する分子を構成する一部の原子のみであるか、あるいは原子状に解離された状態の元素であることが多い。従来の成膜技術は、加熱された基板近傍で、初めて供給した分子を解離する手法が一般的であり、解離のエネルギーを基板温度に求めているが故に、プロセスの低温化にもおのずから限界があった。

構成元素すべてを外部から供給し、基板上に堆積させる成膜技術においては、低温化のアプローチとして、スパッタ法やプラズマCVD法などのプラズマを使った成膜方法が提案され、一部のプロセスでは

実際に用いられている。前者は、プラズマエネルギーを利用して、固体状ターゲットをエッチングし、それを基板上に堆積させるものであり、後者は供給される原料ガスをプラズマエネルギーにより分解し、基板上に堆積させるものである。これらは、供給する原料をあらかじめ解離させた上で基板上に供給するという点で、上記問題点を解決する有力な成膜方法である。

一方、外部から供給する元素を基板原子と反応させて成膜する代表例であるシリコン基板の熱酸化工程は、MOSFETのゲート酸化膜形成プロセスとして広く用いられてきている。この工程は酸素(分子)雰囲気中でシリコン基板を800℃以上の温度に維持することで得られ、良質なゲート絶縁膜を容易に形成できた。この方法で形成されたシリコン酸化膜は熱酸化膜と一般的に呼ばれている。この方法を記述した例としては、B. E. Deal and A. S. Grove, J. Appl. Phys., 36 巻(1965年)3770頁やW. E. Beadle, J. C. C. Tsai and R. D. Plummer eds., Quick Reference Manual for Silicon Integrated Circuit Technology, John Wiley & Sons 社出版, (1985年)がある。このような高温、大活性化エネルギーを有するプロセスが現在使用されている最大の理由は、形成されたシリコン酸化膜/シリコン界面が良好な電気的特性を示すことにある。

シリコン基板上にシリコン酸化膜を低温で形成する手法は、前述のスパッタ法やプラズマCVD法などの基板上に直接堆積する手法を中心に数多く試みられているが、界面特性を記述する代表的な指標である界面準位密度(D i t)の値は一般的に極めて悪い。この理由は、D i t値に直接結びつくS i表面のダングリング・ボンドが、シリコン酸化膜/シリコン界面形成後も残るためであり、一部CVD法などでは水素原子によって終端される場合もあるが、その後の400℃程度のプロセスで容易に結合が切れ、長期信頼性に欠ける面があり、LSIのゲート酸化膜作製に適用するには問題がある。

外部から供給する元素をあらかじめプラズマ中で解離させ、基板原

子と反応させることにより、プロセスの低温化を図った例もある。しかしながら一般にプラズマ中では、極めて広いエネルギー分布を有しており、複数原子から構成される分子をプラズマ内に供給すると、分子状イオンを含む様々な活性種が生成されることが知られている。この手法で形成した膜は、一般に特性があまり良好ではなく、特に、MOSFETのゲート酸化膜のような過酷な使用状況にさらされるような用途には、ほとんど使用例がない。

シリコン酸化膜以外の絶縁膜としてはチッ化シリコンがゲート絶縁膜やパッシベーション膜として用いられる。チッ化シリコンの形成方法は上記シリコン酸化膜と同様に多様である。チッ化シリコンをゲート絶縁膜に用いる場合にはシリコン／チッ化シリコン界面の界面準位の多さが問題となるので界面構造をシリコン／酸化シリコン／チッ化シリコンとすることが一般的である。

近年の素子作製における一連の成膜プロセスの低温化要求が深刻になってきている。この要請に答えるために、すべての成膜プロセスに共通したプロセス温度の低温化技術を構築するという課題がある。

近年、MOSFETの微細化、駆動電源の低電圧化が極限まで進むと従来の熱酸化膜では特性が不十分となってきた。その理由の1つは800℃で数十分という高温の熱処理である。微細化によってMOSFET半導体中の不純物プロファイルがより浅く精密に制御する必要がでてきていると上記熱処理での不純物プロファイルの崩れが問題となってしまう。加熱温度が低いCVDやスパッタ法ではダングリングボンドが多く絶縁特性や界面特性が劣ることはすでに述べた通りである。このようにMOSFETの微細化によって高温の熱処理が許容されなくなった結果として良好な絶縁膜がなくなってしまった課題がある。

MOSFETを取り巻く環境の変化による課題が発生している。生産の効率化のために大口径ウェーハを使用するようになると、大口径ウェーハ全面でのMOSFET特性の均一化を満たさなければならない

い。大口径ウェーハに対応した大型の装置で、従来の熱酸化法を用いて酸化膜を形成する際、約 1.1 eV という比較的大きな活性化エネルギーは、温度のゆらぎに対する反応速度の大きな変化を引き起こす。これは大口径ウェーハにおける膜厚均一性を確保することが難しいことを意味する。1チップ当たりのMOSFET個数が増加して複雑な演算処理を行うようになると個々のMOSFET特性ばらつきの許容が厳しくなっていることを考え合わせると大口径ウェーハで多数のMOSFETを形成するに適した良好な絶縁膜がなくなってしまった課題がある。

低温で作製した絶縁膜をゲート酸化膜として適用するためには、Dit値の低減が必須であり、電気特性を維持するには高温プロセスを使わざるを得ないのが現状である。ウェーハサイズが小さく、微細加工技術も進んでいない状況下では、電気特性を優先するため、高温で、かつ活性化エネルギーの大きなプロセスが使われてきたが、今後のさらなる微細化、ウェーハの大口径化へ向けて、電気特性を犠牲にすることなく、低温でかつ活性化エネルギーの小さなプロセスを構築する必要がある。

成膜プロセスの低温化を実現するためには、その膜を構成している元素を含んだ分子をあらかじめ原子状に解離して供給する手段が考えられる。一方、複数原子から構成される分子は、その基底状態としての分子状態から上のエネルギー状態を有する場合には、分子状態を維持したままでの励起状態（分子励起）、分子状態を維持したままでのイオン化状態（分子イオン化）、原子同士が完全に解離した状態（原子状化）の数多くの状態を取りうる。この際、分子に直接プラズマ等でエネルギーを供給すると、エネルギーの低い順番から順にそれぞれの取りうる状態に励起されていく。従って、ある状態、例えば原子状化を引き起こそうとしても、必ず他の低い励起状態を伴うか、あるいは原子状化のエネルギーが大きい場合には、いくらエネルギーを供給してもほとんど原子状化が起こらないという課題がある。

[発明の開示]

本発明の各原子への解離方法では、各分子の原子状化エネルギーに対応した大きな準安定準位を有する不活性ガスが、あらかじめプラズマエネルギーを吸収し、そのエネルギーを分子に与えるため、分子は直接高いエネルギー状態に励起されることになり、容易に原子状化が起こる。

酸素分子にエネルギーを与えて解離し、原子状酸素を形成する場合、その解離のエネルギーにより、原子状酸素は、エネルギーの小さな順に O^3P 、 O^1D 、 O^3S 等の状態を取り得る。これらの原子状酸素はそれぞれ活性度合いが異なるため、各種酸化反応に適用した場合、その酸化速度や機構の違いが期待される。準安定状態の異なる様々な不活性ガスを酸素に添加しプラズマ状態にすると、生成される原子状酸素の種類が制御できることになる。

分子を効率よく原子状化させるためには、プラズマからのエネルギーを、直接前記分子が得ることを防止し、添加する不活性ガスが受け取ることにより、無駄な分子励起を省くことができる。そのためには、前記不活性ガス比率を前記分子に比べて少なくとも同等以上供給することにより、高効率原子状化が可能となる。

本発明の一部である絶縁膜形成方法においては、シリコン基板表面にシリコン化合物からなる絶縁膜の構成元素をプラズマ中のエネルギーを用いて気体分子を原子状にして供給する際に、前記構成元素の原子状化に必要なエネルギーよりも高いエネルギー状態にプラズマエネルギーを一時的に吸収して放出する性質を有する不活性ガスからの放出エネルギーによって前記構成元素の原子状化を行う。従って、プラズマが含有する多様な大きさのエネルギーによって前記構成元素が分子状励起、分子状イオン化等様々な励起状態となることを抑制して最も高いエネルギー状態である解離（原子状化）状態に反応を純粋化することができる。ところで、前記解離（原子状化）した構成元素がシリコン基板と反応する場合には前記構成元素が酸素の場合は酸化、窒

素の場合には窒化という反応が起きる。これらの反応は活性化エネルギーが低いために低温のシリコン基板上においても容易に起き、温度に関して反応の差違が少ない。またこれらの反応は、シリコン-シリコン結合を切ってシリコン-酸素あるいはシリコン-窒素の結合を生成するという繰り返しであることから、絶縁膜/シリコン界面および絶縁膜中でのダングリングボンドが少なく、界面準位密度が低く、絶縁特性に優れた絶縁膜をシリコン基板上に形成できる。この結果、低温のシリコン基板上に均一に特性の優れた絶縁膜を形成できる。

[図面の簡単な説明]

図1は、1種類の分子を原子状化して用いる際の成膜装置の構成図、図2はヘリウム (He) および水素 (H_2) のエネルギーおよび状態遷移に伴う発光を説明する図、図3は水素 (H_2) にヘリウム (He) を添加したときの発光スペクトルの変化を示す図、図4は3種類の分子を原子状化して用いる際の成膜装置の構成図、図5は3種類の原料と、原子状化した1種類の分子を用いる際の成膜装置の構成図、図6は1種類の原料と、原子状化した1種類の分子を用いる際の成膜装置の構成図、図7は2種類の分子を原子状化して用いる際の成膜装置の構成図、図8は水素 (H_2) に同等を超える量のヘリウム (He) を添加したときの発光スペクトルの変化を示す図、図9は絶縁膜のパターニングによりソース、ドレイン領域を開口したシリコン基板の模式的断面図、図10は素子分離したシリコン基板の模式的断面図である。

[発明を実施するための第1の最良の形態]

次に、本発明を図面に基づいて説明する。

図1に本発明の成膜方法に係わる成膜装置の構成図を示す。本実施例では、ヘリウム (He) と水素 (H_2) の混合プラズマから高効率に供給される原子状水素を用いて白金 (Pt) 基板上に高濃度の水素を含有した Pt 薄膜を作製する成膜方法について説明する。図1にお

いて、1は真空容器である。この真空容器には水素とHeの混合ガスがフレキシブルチューブ2を通じて導入される。この混合ガスは、マイクロ波キャビティ3が取り付けられた石英管4内でプラズマ状態になる。マイクロ波キャビティ3が取り付けられた石英管4は、真空容器1の右側に装着されたフランジ5に取り付けることも可能であり、対極に取り付けられた分光器6によりプラズマ中の発光分析も可能となっている。真空容器内部に設置された板状Ptである基板7が同じく真空容器内部に設置された加熱ホルダー8の上に固定されている。

図1の装置において、まず、ポンプ100を用いて真空容器1の真空度を 1×10^{-5} Torr以下に排気する。この真空環境で前記加熱ホルダー8を昇温することで板状Ptである基板7を300℃に加熱する。HeとH₂の混合ガスを石英管4を通じて真空容器1内に導入する。HeとH₂を導入する際、その分子数密度比率は1:1である。混合ガス導入によって真空度は1 Torrとなる。石英管4にマイクロ波キャビティ3を通じて2.45 GHz、100 Wのマイクロ波を導入し、HeとH₂の混合プラズマを発生させる。発生した原子状水素がPt基板上に供給され、Pt膜の表面に、高濃度の水素を含有したPt膜が成膜される。

上記成膜方法の過程についてさらに詳細に述べる。図2にはプラズマのエネルギーが効率的に水素分子の原子状化に使われる過程をエネルギー図で示している。図2においてHeの励起レベルは基底状態よりも19.82 eV高い。一方、基底状態の水素分子は、約19 eV程度のエネルギーを得ることにより、原子状水素に解離する。解離された励起状態の原子状水素(H*)は、121.6 nmの真空紫外光を放出し基底状態の原子状水素となる。本実施例のように、プラズマ中のHe原子数がH₂原子数に比べて遜色無く存在する場合には、H₂分子が励起したHe原子からエネルギーを受け取ることにより、高効率で原子状化が起こる。しかしながらプラズマ中に水素分子が単独で存在する場合には、分子状態のままの励起が支配的となり、原子状

水素の生成効率は極めて低い。

図3に、 $\text{He}-\text{H}_2$ 系の混合ガスがプラズマ中で効率的に原子状水素を生成している様子を示している。この測定は、図1におけるマイクロ波キャビティ3および石英管4をフランジ5に取り付け、プラズマ内の発光の様子を分光器6によって測定したものである。水素分子単独でプラズマを発生させた場合に比べて、原子状水素生成の尺度となる 121.6 nm の発光強度が増大し、分子励起の尺度である 160 nm 近辺の発光が減少していることが観察される。

[発明を実施するための第2の最良の形態]

本発明に係る絶縁膜の形成方法の一実施例について、図4を用いて説明する。本実施例に於いては、絶縁膜上に形成されたアルミニウム(A1)配線をパッシベーションするために、低誘電率材料である SiOF 膜を低温で形成する方法について説明する。図4において、9は真空容器である。図1におけるフレキシブルチューブ2、マイクロ波キャビティ3、石英管4を組み合わせたプラズマ発生装置が10、11、12の3個取り付けてある。図1と同様、分光器13、基板14、および加熱ホルダー15が取り付けられている。

図4の装置において、ポンプ100を用いて真空容器9の真空度を $1 \times 10^{-4} \text{ Torr}$ 以下に排気する。加熱ホルダー15を 200°C に昇温し、基板14を加熱する。ここで基板14は、A1膜を絶縁体膜上に堆積後パターニングした、A1配線が露出しているものである。プラズマ発生装置10、11、12それぞれに、シラン(SiH_4) + アルゴン(Ar)、酸素(O_2) + キセノン(Xe)、フッ素(F_2) + クリプトン(Kr)の各混合ガスを供給し、 2.45 GHz 、 100 W のマイクロ波によりそれぞれにプラズマを発生させる。プラズマ発生装置10、11、12から原子状のシリコン(Si)、酸素(O)、フッ素(F)を各々発生させ基板上に供給することにより、低誘電率の SiOF 膜が形成できる。 SiOF 構成元素の組成をそれぞれの原

子状化率を換えることにより制御し、誘電率を制御できる例もある。

[発明を実施するための第3の最良の形態]

本発明に係る強誘電体薄膜の形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた強誘電体薄膜形成装置を図5に示す。本実施例に於いては、白金(Pt)/酸化マグネシウム(MgO)積層構造を有する下地膜上に、酸化物強誘電体であるPb(Zr, Ti)O₃膜を成膜する方法について説明する。図5において、16は真空容器、17はプラズマ発生装置である。真空容器内に設置されたPt/MgO積層構造を有する基板18が加熱ホルダー19の上に固定されている。また、3本のガス導入口20が真空容器に備え付けられている。

図5の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器16の真空度を 1×10^{-5} Torr以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー19を昇温することで基板18を450℃に加熱する。ガス導入系20からテトラエチル鉛(TEL: Pb(C₂H₅)₄)、ジルコニウムテトラターシャリーブトキシサイド(BOZ: Zr(t-OC₄H₉)₄)、およびチタニウムテトライソプロポキシサイド(POT: Ti(i-OC₃H₇)₄)をそれぞれ真空容器16内に導入する。さらに酸化ガスとしてネオン(Ne)と酸素(O₂)の混合ガスをプラズマ発生装置17を通して真空容器16内に導入する。Ne+O₂混合プラズマから得られる原子状酸素と、各原料ガスとが真空容器16内で反応し、基板18上にPb(Zr, Ti)O₃膜が堆積する。O₂分子単独でプラズマを発生させたときに比べ、混合ガスプラズマを用いることで膜中の酸化状態が大幅に改善された。

[発明を実施するための第4の最良の形態]

本発明に係る化合物半導体膜の形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置の原理図を図6に示す。本実施例では、サファイヤ(Al₂O₃)基板上に化合物半導体である窒化ガリウム

(GaN) 膜を成膜する方法について説明する。図6において21は真空容器、22はプラズマ発生装置である。真空容器内に設置された Al_2O_3 からなる基板23が加熱ホルダー24の上に固定されている。また、ガス導入口25が真空容器に備え付けられている。

図6の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器21の真空度を 1×10^{-5} Torr以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー24を昇温することで Al_2O_3 基板23を加熱する。ガス導入口25からガリウム原料を導入する。もう一つの原料である窒素分子はヘリウムガスと混合し、2.45 GHz、100 Wのマイクロ波を使ったプラズマ発生装置22内で原子状化される。通常解離しにくい窒素分子を、あらかじめ前記プラズマ発生装置内で原子状化させることにより、GaN成膜におけるバッファ層作製および本成膜ともに従来よりも低温化された。

[発明を実施するための第5の最良の形態]

本発明に関わる非晶質半導体膜の形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例1と同一のものである。本実施例においては、ガラス板上に透明電極膜を形成した基板上に太陽電池用非晶質シリコン薄膜を堆積する方法について説明する。従って実施例1の説明図である図1の7は、本実施例ではガラス板上に透明電極膜を形成した基板となる。

図1の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器1の真空度を 1×10^{-5} Torr以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー8を昇温することで透明電極膜/ガラス積層構造基板7を300℃に加熱する。原料ガスであるシラン(SiH_4)ガスを5倍のアルゴン(Ar)ガスで希釈し、石英管4を通じて真空容器1内に導入する。ガス導入によって真空容器1内の真空度は1 Torrとなる。石英管4にマイクロ波キャビティ3を通じて2.45 GHz、100 Wのマイクロ波を導入し、 SiH_4 とArの混合プラズマを発生させ

る。プラズマエネルギーの大半を Ar ガスが吸収し、 SiH_4 ガスが Ar の励起状態のエネルギー (11.6 eV) のみを受け取ることに
より、ほぼすべてが原子状 Si の状態に分解され、高品質な非晶質シリ
コン膜が形成された。

[発明を実施するための第6の最良の形態]

本発明に係るパッシベーション薄膜形成方法の一実施例について説
明する。本実施例に用いた成膜装置を図7に示す。本実施例に於いて
は、絶縁膜上に形成されたアルミニウム (Al) 配線をパッシベーシ
ョンするために、シリコン酸化膜 (SiO_2 膜) を堆積する方法につ
いて説明する。図7において、26は真空容器、27、28はプラズ
マ発生装置である。絶縁膜上にパターンニングされた Al 配線構造を有
する基板29が真空容器内で加熱ホルダー30の上に固定されている。

図7の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器26の真
空度を $1 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ 以下に排気した後、そのまま加熱ホルダ
ー30を昇温することで基板29を 300°C に加熱する。シラン (SiH_4) に5倍のアルゴン (Ar) を添加し、その混合プラズマをプ
ラズマ発生装置27で発生させることにより、実施例5と同様に、 SiH_4 ガスが原子状 Si へと分解され、真空容器26へ供給される。
同様にプラズマ発生装置28に、酸素 (O_2) に20倍のクリプトン
(Kr) を添加した混合ガスを供給することにより原子状酸素が生成
され、基板29上に SiO_2 膜が堆積される。堆積時の真空容器内の
真空度は 1 Torr であった。同様に、 $\text{Ar} + \text{SiH}_4$ 、およびヘリ
ウム+窒素で各々形成された原子状のシリコンおよび窒素を用いてシ
リコン窒化膜が形成された例もある。

[発明を実施するための第7の最良の形態]

本発明に係る分子の原子状化を高効率に行う一実施例について説明
する。本実施例に用いた装置は実施例1と同一のものである。本実施

例においては、水素分子の高効率原子状化について説明する。図8に、ヘリウム (He) + 水素 (H_2) を 25 : 1 の混合比でプラズマ中に供給された場合の、 H_2 の高効率原子状化を示す発光スペクトルを示す。この測定は、図1におけるマイクロ波キャビティ3および石英管4をフランジ5に取り付け、プラズマ内の発光の様子を分光器6によって測定したものである。 $\text{He} + \text{H}_2$ を 1 : 1 で供給した場合に比べ、 He 供給量を増大させ H_2 供給量を減少させた 25 : 1 の混合比の場合、原子状水素生成に伴う 121.6 nm の発光強度がさらに飛躍的に増大し、分子励起の尺度である 160 nm 近辺の発光がさらに押さえられていることが観察される。なお、本実施例は、実施例1にも適応可能であり、実施例2から4の酸素分子、フッ素分子および窒素分子の高効率原子状化に対しても、実施された例がある。

〔発明を実施するための第8の最良の形態〕

本発明に関わるリン (P) ドープシリコン領域の形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例1と同一のものである。本実施例においては、図9に示す絶縁膜のパターニングによりソース、ドレイン領域を開口したシリコン基板を、下地基板として用いている。従って実施例1の装置説明図である図1の7は、本実施例では上記シリコン基板となる。

図1の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器1の真空度を 1×10^{-5} Torr 以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー8を昇温することで基板7を 500°C に加熱する。P の原料となる P_2O_5 ガスを He と混合させ、石英管4を通じて真空容器1内に導入する。ガス導入によって真空容器1内の真空度は 1 Torr となる。石英管4にマイクロ波キャビティ3を通じて 2.45 GHz、100 W のマイクロ波を導入し、 P_2O_5 と He の混合プラズマを発生させる。プラズマエネルギーの大半を He が吸収し、 P_2O_5 へエネルギーを渡すことにより、ほぼすべてが原子状 P の状態にまで分解さ

れ、パターニングされた開口部に従来よりも低温でPドーブシリコン領域が形成された。なお、上記ガスを $B_2O_3 + Ne$ に換えることにより、ボロン(B)ドーブシリコン領域が形成された例もある。

[発明を実施するための第9の最良の形態]

本発明に関わるボロン(B)ドーブシリコン領域の形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例6と同一のものである。本実施例の基板には、シリコン基板を用いている。従って実施例6の装置説明図である図7の29は、本実施例では上記シリコン基板となる。

図7の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器26の真空度を $1 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ 以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー30を昇温することで基板29を 500°C に加熱する。Bの原料となる B_2O_3 ガスをNeと混合させ、プラズマ発生装置27に導入する。プラズマ発生装置28には、 $Ar + SiH_4$ の混合ガスを導入する。それぞれからB原子およびSi原子が生成され、シリコン基板上にBドーブシリコン膜が堆積された。

[発明を実施するための第10の最良の形態]

本発明に関わるゲート酸化膜形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例1と同一のものである。本実施例においては、図10に示す素子分離したシリコン基板を下地基板として用いている。従って実施例1の装置説明図である図1の7は、本実施例では上記素子分離したシリコン基板となる。

図1の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器1の真空度を $1 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ 以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー8を昇温することで上記素子分離したシリコン基板7を 500°C に加熱する。石英管4を通じてアルゴン(Ar)と酸素(O_2)を真空容器1内に導入する。このとき、Arと O_2 は25:1の混合比で

合計100 s c c mの流量である。ガス導入によって真空容器1内の真空度は1 T o r rとなる。石英管4にマイクロ波キャビティ3を通じて2.45 G H z、100 Wのマイクロ波を導入し、A r とO₂の混合プラズマを発生させる。プラズマのエネルギーを多量のA r が消費し、それをO₂が受け取ることで、O₂が原子状化され、上記素子分離したシリコン基板7のシリコン開口部において、上記原子状化した酸素とシリコン基板との反応によりシリコン酸化膜が形成される。本実施例でのシリコン基板の酸化において、従来の酸素分子による800℃熱酸化に匹敵する酸化速度が得られた。

[発明を実施するための第11の最良の形態]

クリプトン(K r)と酸素(O₂)を組み合わせるシリコン基板を酸化する成膜方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例1と同一のものである。本実施例においては、実施例10と同様に、図10に示した素子分離したシリコン基板を下地基板として用いている。従って実施例1の装置説明図である図1の7は、本実施例において、上記素子分離したシリコン基板となる。

図1の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器1の真空度を 1×10^{-5} T o r r以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー8を昇温することで基板7を500℃に加熱する。クリプトン(K r) + 酸素(O₂)を25 : 1の流量比で合計100 s c c mになるよう供給し、石英管4を通じて真空容器1内に導入する。ガス導入によって真空容器1内の真空度は1 T o r rとなる。石英管4にマイクロ波キャビティ3を通じて2.45 G H z、100 Wのマイクロ波を導入し、K r とO₂の混合プラズマを発生させる。プラズマエネルギーの大半をK r が吸収し、その励起エネルギー(9.92 e V)をO₂へ渡すことにより、ほぼすべてが原子状酸素の状態にまで解離され、前記素子分離したシリコン基板7のシリコン開口部が酸化される。形成されたS i O₂/S i 界面の界面準位密度としては、D i t (mid

gap)で $3 \times 10^{11} / \text{cm}^2 \cdot \text{eV}$ の値が得られた。なお、本実施例において、基板温度を 300°C から 600°C まで変化させて、拡散律速を示す上記酸化反応の活性化エネルギーを調べたところ、約 0.14 eV の値が得られ、基板温度変化に対する酸化速度の変化が極めて小さいことが示された。なお、本実施例において、基板温度を 400°C に設定して酸化を行ったところ、D i t (mid gap)で $5 \times 10^{11} / \text{cm}^2 \cdot \text{eV}$ の値が得られた例もある。

[発明を実施するための第12の最良の形態]

キセノン (Xe) と酸素 (O_2) を組み合わせてシリコン基板を酸化する成膜方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例1と同一のものである。本実施例においては、実施例10と同様に、図10に示した素子分離したシリコン基板を下地基板として用いている。従って実施例1の装置説明図である図1の7は、本実施例において、上記素子分離したシリコン基板となる。

図1の装置において、まずポンプ100を用いて真空容器1の真空度を $1 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ 以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー8を昇温することで基板7を 500°C に加熱する。キセノン (Xe) + 酸素 (O_2) を25 : 1の流量比で合計 100 sccm になるよう供給し、石英管4を通じて真空容器1内に導入する。ガス導入によって真空容器1内の真空度は 1 Torr となる。石英管4にマイクロ波キャビティ3を通じて2.45 GHz、100 Wのマイクロ波を導入し、 Xe と O_2 の混合プラズマを発生させる。これによって生成された原子状酸素によって、前記素子分離したシリコン基板7のシリコン開口部が酸化される。 Xe と O_2 混合プラズマを用いた本実施例では、従来の 900°C 熱酸化と同等の酸化速度が得られ、酸化速度という観点において 400°C の低温化が実現された。

[発明を実施するための第13の最良の形態]

ヘリウム (He) と窒素 (N₂) を組み合わせてシリコン基板を窒化する成膜方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例 1 と同一のものである。本実施例においては、実施例 10 と同様に、図 10 に示した素子分離したシリコン基板を下地基板として用いている。従って実施例 1 の装置説明図である図 1 の 7 は、本実施例において、上記素子分離したシリコン基板となる。

図 1 の装置において、まずポンプ 100 を用いて真空容器 1 の真空度を 1×10^{-5} Torr 以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー 8 を昇温することで基板 7 を 600℃ に加熱する。ヘリウム (He) + 窒素 (N₂) を 10 : 1 の流量比で合計 100 sccm になるよう供給し、石英管 4 を通じて真空容器 1 内に導入する。ガス導入によって真空容器 1 内の真空度は 1 Torr となる。石英管 4 にマイクロ波キャビティ 3 を通じて 2.45 GHz、100 W のマイクロ波を導入し、He と N₂ の混合プラズマを発生させる。これによって生成された原子状窒素によって、前記素子分離したシリコン基板 7 のシリコン開口部が直接窒化された。

[発明を実施するための第 14 の最良の形態]

本発明に関わる酸窒化膜 (SiON 膜) 形成方法の一実施例について説明する。本実施例に用いた成膜装置は、実施例 6 と同一のものである。本実施例においては、図 10 に示す素子分離したシリコン基板を下地基板として用いている。従って実施例 6 の装置説明図である図 7 の 29 は、本実施例では上記素子分離したシリコン基板となる。

図 7 の装置において、まずポンプ 100 を用いて真空容器 26 の真空度を 1×10^{-5} Torr 以下に排気する。この真空環境で加熱ホルダー 30 を昇温することで基板 29 を 600℃ に加熱する。クリプトン (Kr) + 酸素 (O₂) を 25 : 1 の流量比でプラズマ発生装置 27 に供給する。プラズマ発生装置 28 にはヘリウム (He) + 窒素 (N₂) を 10 : 1 で供給する。ガス導入によって真空容器 26 内の

真空度は1 T o r rとなる。それぞれのプラズマ発生装置によって生成された原子状酸素および原子状窒素がシリコン基板表面と反応し、良好な界面特性と高誘電率を有するS i O N膜が形成された。

[産業上の利用の可能性]

本発明によれば、複数原子から構成される分子の高効率原子状化が可能のため、前記分子を用いたプロセスの低温化が可能となる。

請求の範囲

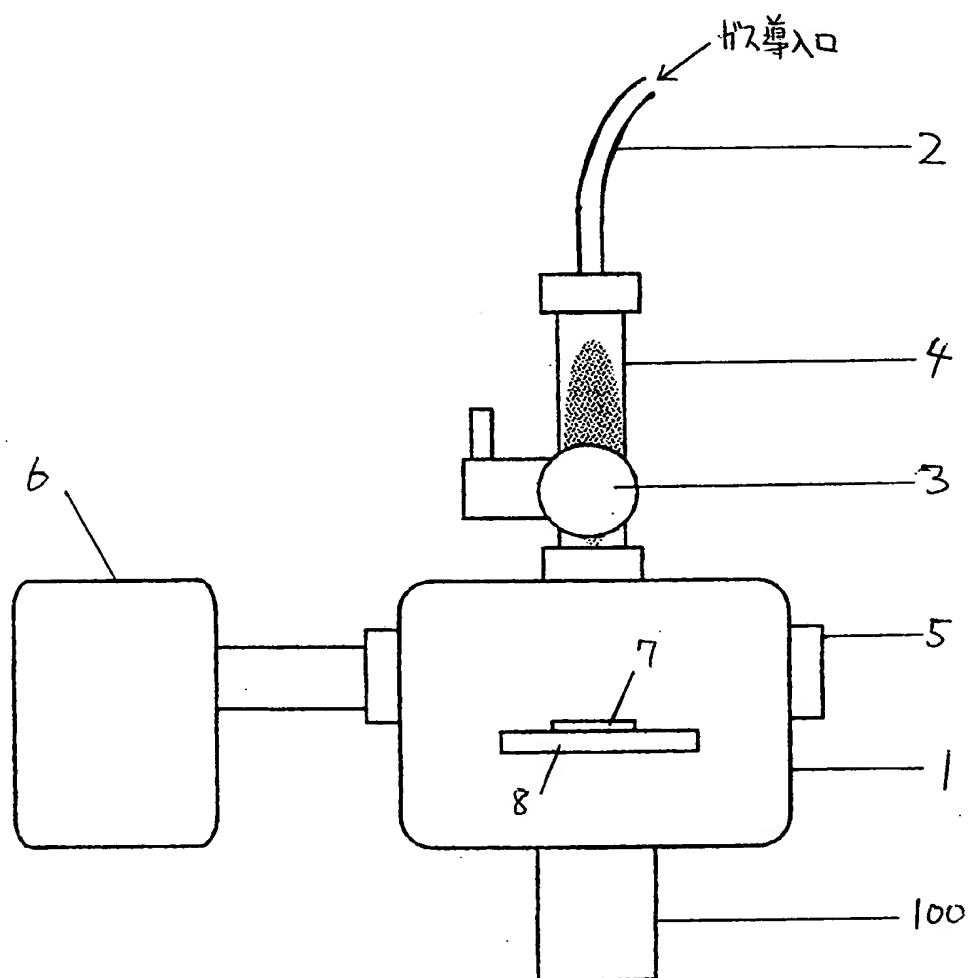
1. 複数原子から構成される気体分子を基板上に供給する成膜方法において、前記気体分子の原子状化に必要なエネルギーよりも高い準安定エネルギー準位を有する不活性ガスと前記気体分子との混合ガス雰囲気中でプラズマを発生させて、前記気体分子を原子状化させることを特徴とする成膜方法。
2. 請求の範囲第1項において、前記気体分子が酸素分子であることを特徴とする成膜方法。
3. 請求の範囲第1項において、前記気体分子が窒素分子であることを特徴とする成膜方法。
4. 請求の範囲第1項または第2項または第3項において、前記混合ガス中の前記不活性ガスの分子数密度が前記気体分子の分子数密度の少なくとも同等を超えることを特徴とする成膜方法。
5. 請求の範囲第1項または第2項または第3項または第4項の成膜方法において、前記基板がシリコン基板であってかつ前記気体分子が成膜するシリコン化合物の構成元素を含んでいることを特徴とする成膜方法。
6. 請求の範囲第5項において、前記シリコン化合物中のシリコン元素の少なくとも一部の原子が前記原子状化した気体分子から供給されることを特徴とする成膜方法。
7. 請求の範囲第5項において、前記シリコン化合物がシリコン酸化膜であることを特徴とする成膜方法。
8. 請求の範囲第7項において、前記不活性ガスと前記気体分子の組合せがクリプトン (Kr) と酸素分子であり、これによってシリコン基板を酸化することを特徴とする成膜方法。
9. 請求の範囲第7項において、前記不活性ガスと前記気体分子の組合せがキセノン (Xe) と酸素分子であり、これによってシリコン基板を酸化することを特徴とする成膜方法。

10. 請求の範囲第5項において、前記シリコン化合物がシリコン窒化膜であり、前記不活性ガスと前記気体分子をヘリウム（He）と窒素分子の組み合わせとすることによってシリコン基板を窒化することを特徴とする成膜方法。

11. 請求の範囲第5項において、前記シリコン化合物がシリコン酸窒化膜であることを特徴とする成膜方法。



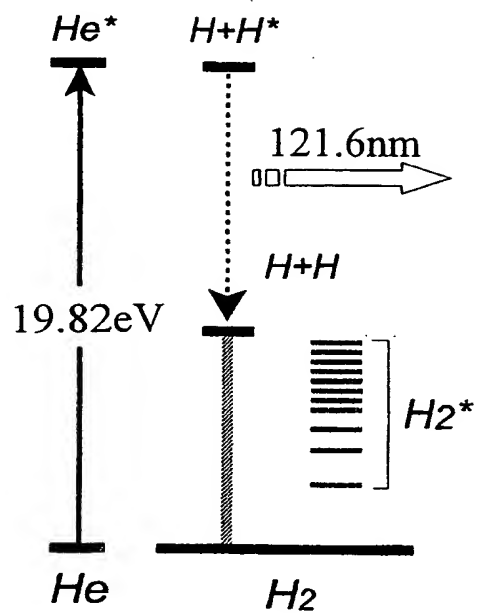
図 1





2/7

図 2



エネルギー図と遷移に伴う発光

図 3

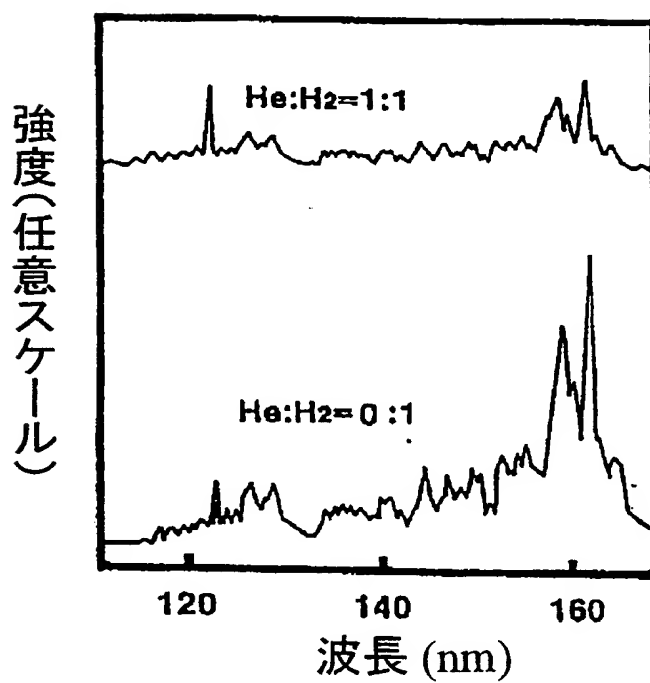




図 4

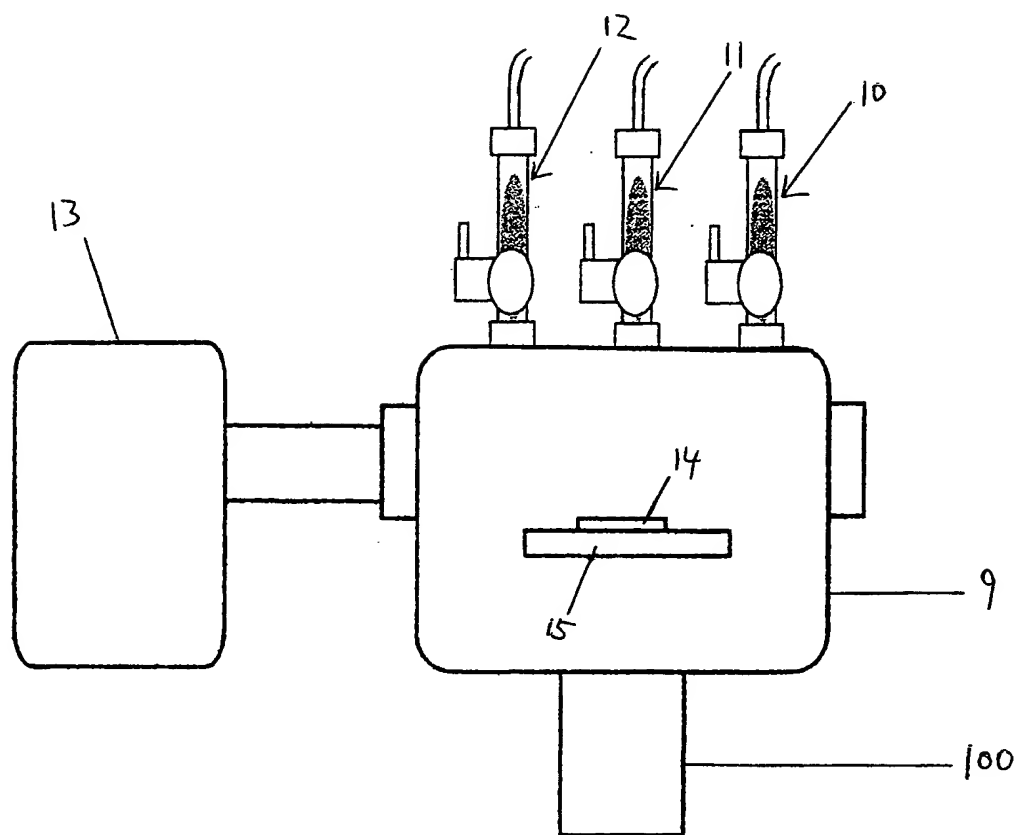




図 5

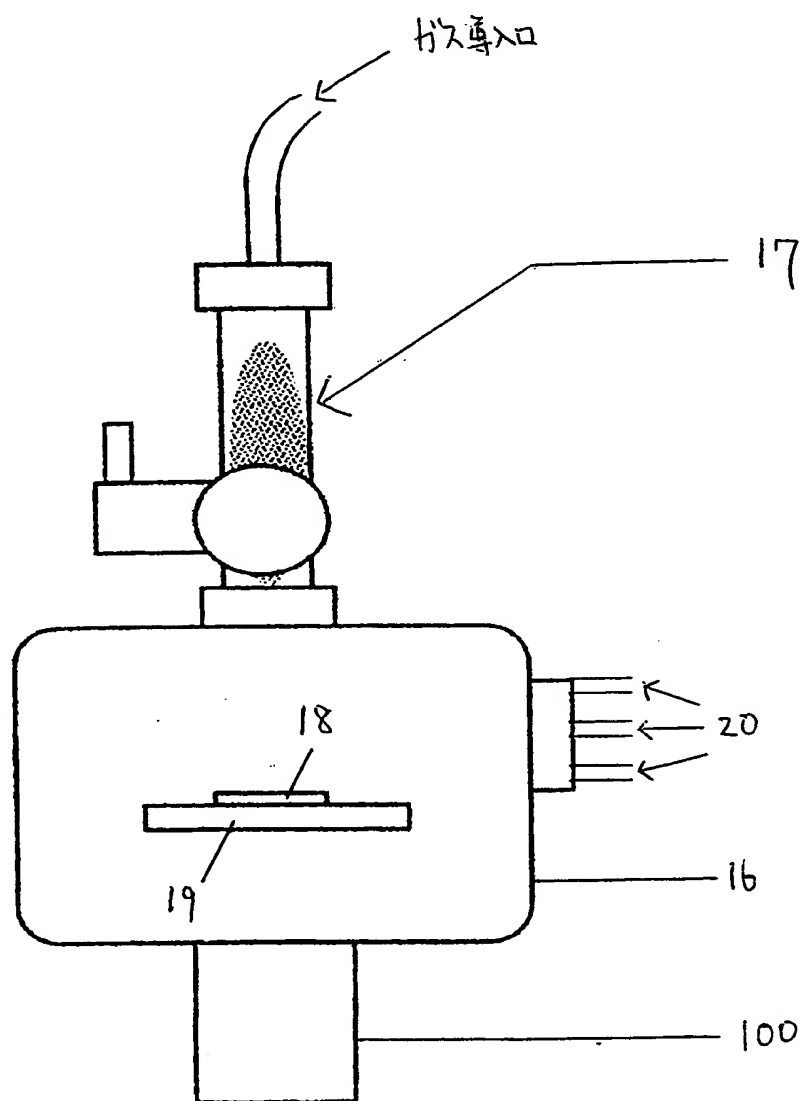




図 6

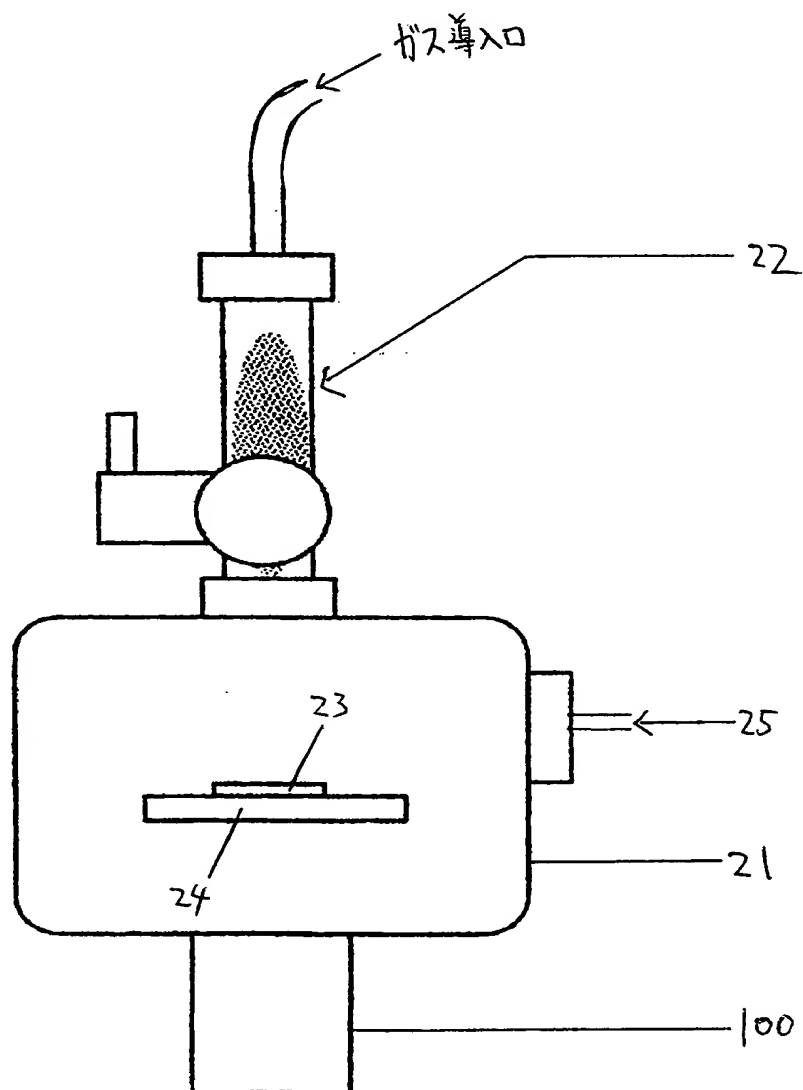
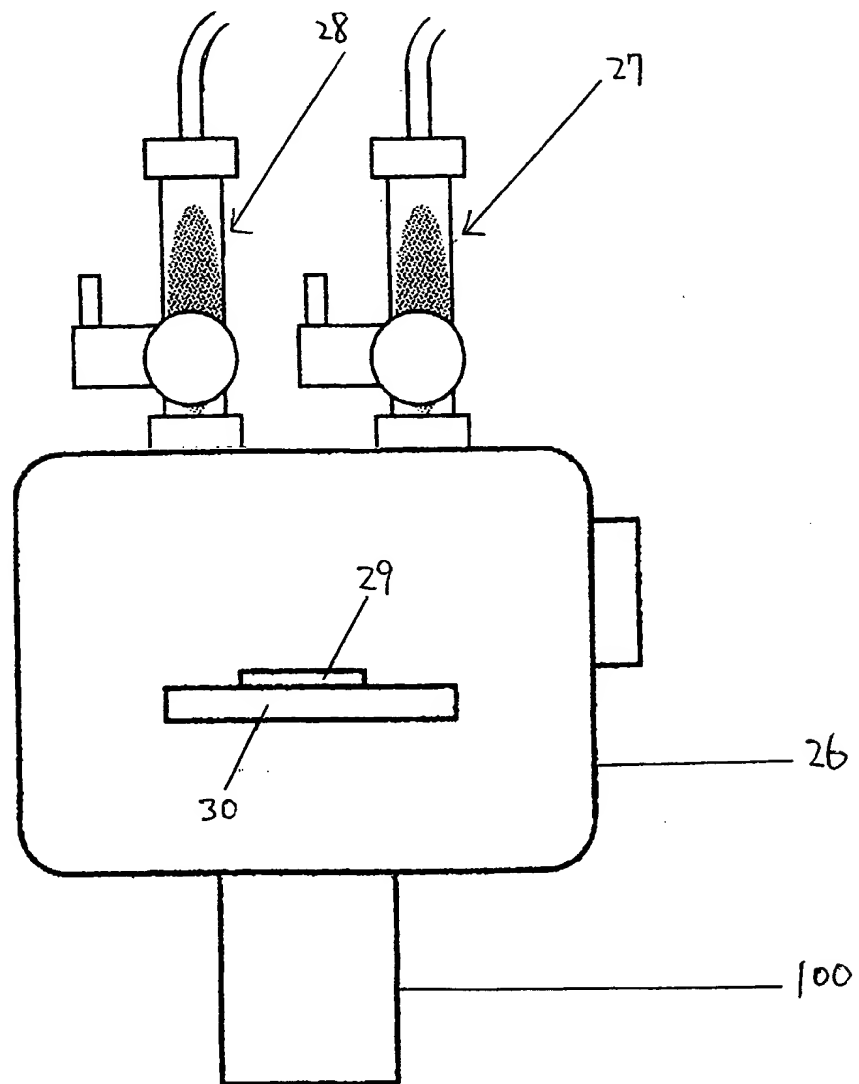




図 7





7/7

図 8

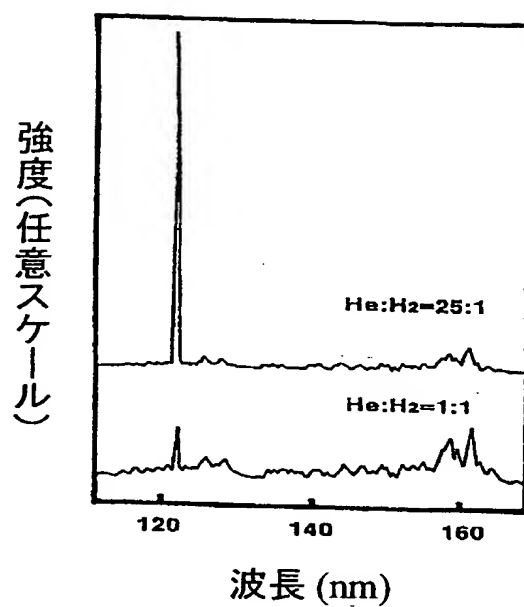


図 9

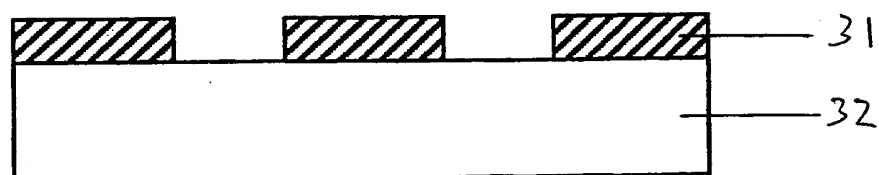
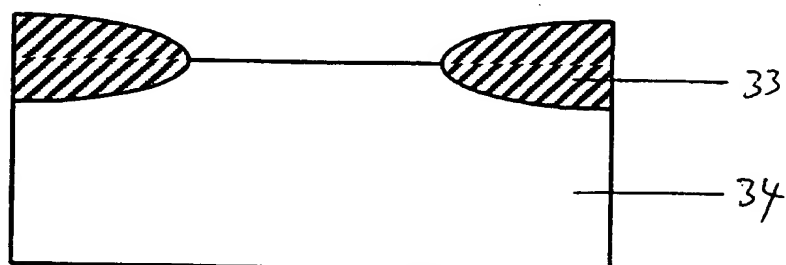


図 10





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

National application No.

PCT/JP99/01429

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.C1⁶ H01L21/316, H01L21/318

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.C1⁶ H01L21/316, H01L21/318

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1957-1993 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1972-1993 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 7-29898, A (Tadahiro Ohmi), 31 January, 1995 (31. 01. 95), Full text & WO, 9502896, A1 & EP, 709879, A1 & EP, 709879, A4	1, 2, 4, 5, 6, 7, 8, 9
A	JP, 9-64176, A (Oki Electric Industry Co., Ltd.), 7 March, 1997 (07. 03. 97), Column 2, lines 20 to 28 Column 3, lines 2 to 17 & EP, 788148, A1 & EP, 788148, A4	1
A	JP, 10-242142, A (ASM Japan K.K.), 11 September, 1998 (11. 09. 98), Column 4, lines 25 to 27 (Family: none)	1
A	JP, 63-206461, A (Nippon Telegraph & Telephone Corp.), 25 August, 1988 (25. 08. 88), Full text (Family: none)	3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
15 June, 1999 (15. 06. 99)

Date of mailing of the international search report
22 June, 1999 (22. 06. 99)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/01429

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 56-116869, A (Shunpei Yamazaki), 12 September, 1981 (12. 09. 81), Full text (Family: none)	3

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int CL⁶ H01L21/316, H01L21/318

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int CL⁶ H01L21/316, H01L21/318

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1957-1993

日本国公開実用新案公報 1972-1993

日本国登録実用新案公報 1994-1999

日本国実用新案登録公報 1996-1999

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 7-29898, A (大見忠弘), 31. 1月. 1995 (31. 01. 95), 全文, &WO, 9502896, A1 &EP, 709879, A1 &EP, 709879, A4	1、2、4、 5、6、7、 8、9
A	J P, 9-64176, A (沖電気工業株式会社), 7. 3月. 1997 (07. 03. 97), 第2欄, 第20-28行, 第3欄, 第2-17行, &EP, 788148, A1 &EP, 788148, A4	1

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15. 06. 99

国際調査報告の発送日

22.06.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

池淵 立



4 R

8831

電話番号 03-3581-1101 内線 3469

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 10-242142, A (日本エー・エス・エム株式会 社), 11. 9月. 1998 (11. 09. 98), 第4欄第25-27行 (ファミリーなし)	1
A	J P, 63-206461, A (日本電信電話株式会社), 25. 8月. 1988 (25. 08. 88), 全文 (ファミリーなし)	3
A	J P, 56-116869, A (山崎舜平), 12. 9月. 1981 (12. 09. 81), 全文 (ファミリーなし)	3